

N° d'ordre :

THÈSE

DE DOCTORAT D'ÉTAT ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

PRÉSENTÉE À L'UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

Philippe CAHUZAC

LABORATOIRE AIMÉ COTTON

C. N. R. S.

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS-SCIENCES

APPLICATION des METHODES d'ABSORPTION SATUREE à la
SPECTROSCOPIE ATOMIQUE - STRUCTURE HYPERFINE et
TEMPS de RELAXATION - CAS DE LA RAIE $\lambda = 1,5\mu$ du BARYUM.

SOUTENUE LE Janv. 1974 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

M. P. JACQUINOT : Président
MM. A. KASTLER }
J. BROSSEL } Examineurs
J. BROCHARD }

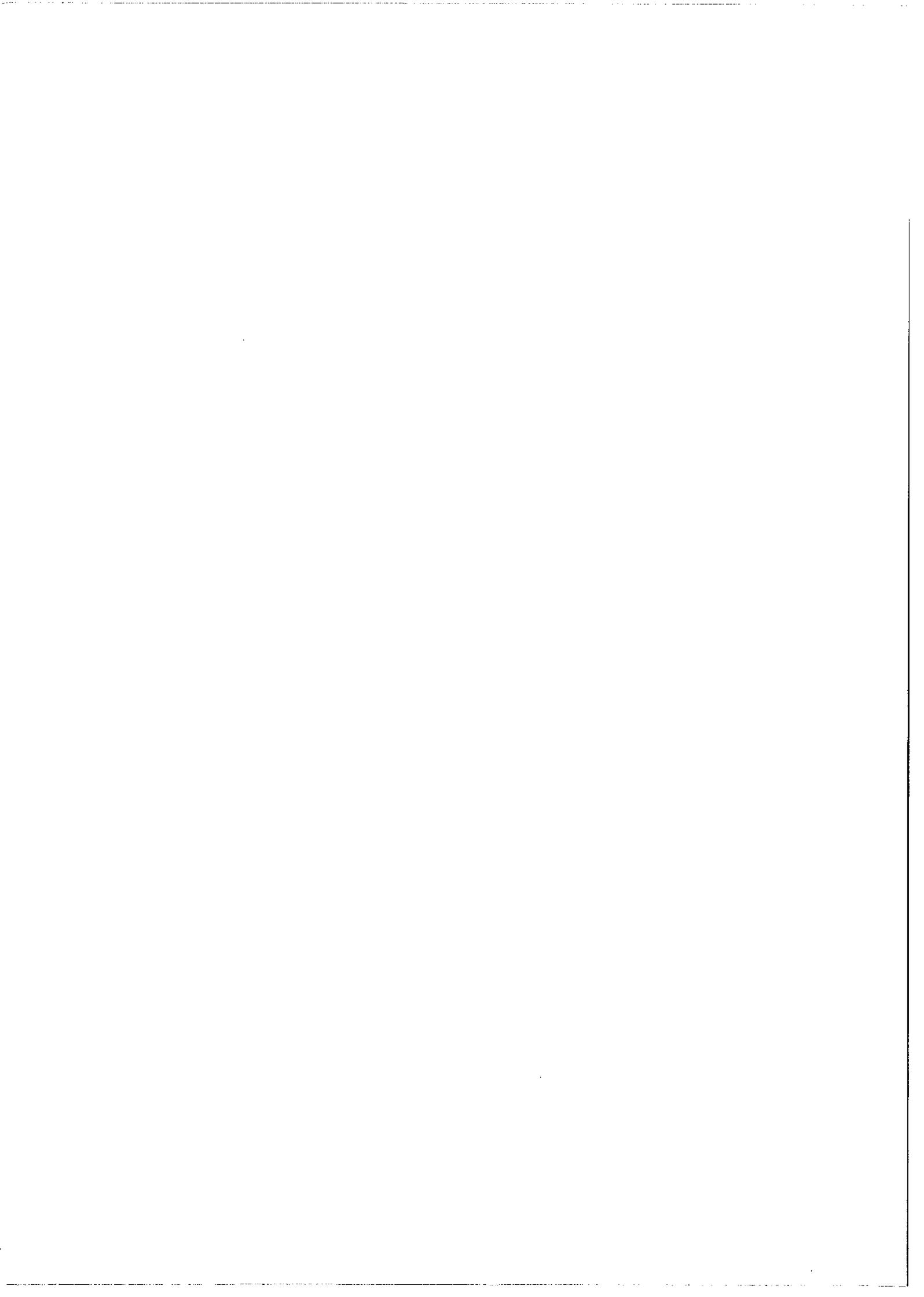


TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION	1
<u>1ère Partie : LASERS A VAPEUR METALLIQUE</u>	11
A) Développement des lasers à vapeur métallique	12
B) Raies laser dans les vapeurs des alcalino-terreux	21
1. Dispositif expérimental	21
2. Comparaison des résultats obtenus dans les alcalino-terreux	25
Cas du baryum et du strontium	26
Cas du magnésium	28
C) Mise au point d'un laser monomode accordable en fréquence	30
1. Description du laser source	30
2. Calibrage de la fréquence émise par le laser	36
<u>2ème Partie : SPECTROSCOPIE SANS EFFET DOPPLER</u>	45
<u>CHAPITRE I : EXPERIENCES PRELIMINAIRES</u>	47
A) Absorption linéaire dans un jet atomique	47
B) Absorption saturée dans un tube à décharge	50
<u>CHAPITRE II : ASPECTS THEORIQUES DE L'ABSORPTION</u> SATUREE	57
A) Saturation de l'absorption pour une transi- tion sans structure - Système à deux niveaux	58

1. Calcul élémentaire - Modification de la population des niveaux	58
2. Calcul tenant compte des relations de phase entre les dipôles atomiques	65
3. Profil expérimental du coefficient d'absorption - Conditions d'observation	74
B) Saturation de l'absorption pour une transition présentant une structure - Système à trois niveaux	77
1. Position du problème	77
2. Etude d'un système à trois niveaux	78
3. Intensités relatives des résonances	85

CHAPITRE III : APPLICATION DES METHODES D'ABSORPTION

SATUREE A L'ETUDE DE LA STRUCTURE HYPERFINE D'UNE TRANSITION ATOMIQUE DU BARYUM	93
A) Détection du signal de saturation	94
B) Etude du temps de relaxation du niveau métastable	96
C) Mesure du paramètre de saturation	99
D) Préparation du baryum isotopique	101
E) Analyse des enregistrements	103

CHAPITRE IV : SATURATION DE L'ABSORPTION D'UN MILIEU

PAR UNE IMPULSION BREVE - ETUDE DE LA DISPARITION DE LA TRANSPARENCE	107
A) Montage expérimental	109
1. Ligne à retard optique	111

2. Détection électronique	114
3. Fonctionnement du laser source	119
B) Analyse théorique	120
1. Rappels de quelques résultats de la théorie cinétique des gaz	120
2. Evolution du coefficient d'absorption après le passage de l'impulsion saturante	123
a) calcul élémentaire	123
b) effet des collisions élastiques	126
3. Effets secondaires	132
a) influence de la durée finie des impulsions	132
b) influence de la migration des atomes	136
c) influence d'une saturation par les faisceaux sonde	138
4. Résultats expérimentaux	140
a) conditions expérimentales - mode opérateur	140
b) analyse des résultats	142
CONCLUSION	145

APPENDICE DE LA 1ère PARTIE

ETUDE DU FABRY-PEROT SPHERIQUE MULTIPASSAGES

- A) Fabry-Perot multipassages en reflexion
 - 1) Application à la mesure de pouvoirs réflecteurs élevés
 - 2) Ligne à retard optique
- B) Fabry-Perot en transmission

APPENDICE DE LA 2ème PARTIE

ETUDE D'UN SYSTEME A TROIS NIVEAUX

ANNEXES

Articles présentés.

Annexe I : "Raies laser infrarouges dans les vapeurs de terres rares
et d'alcalino-terreux".

Ph. Cahuzac J. Phys. 32 p. 499 (1971)

Annexe II : "New infrared laser lines in Mg vapor".

Ph. Cahuzac IEEE J. of Quant. Electr. QE-8 n° 6
p. 500 (1972)

Annexe III : "Mesure de la structure hyperfine d'une transition infra-
rouge du baryum I en absorption saturée"

Ph. Cahuzac Physica 67 n° 3 p. 567 (1973)

BIBLIOGRAPHIE

INTRODUCTION

La largeur des raies spectrales émises par les sources classiques est depuis longtemps une limitation fondamentale dans l'analyse des spectres. En effet bon nombre de structures présentant un intérêt spectroscopique sont de l'ordre de grandeur de la largeur Doppler ou plus serrées encore. Au cours des dernières années les connaissances acquises dans l'étude de ces structures ainsi que les progrès réalisés dans la mise au point d'appareils à très haute résolution ont été tels que cette limite joue un rôle de plus en plus important. Bien que diminuant comme le nombre d'onde des raies l'effet Doppler reste important même dans l'infrarouge proche. Dans la région du spectre visible il limite la résolution à des valeurs bien inférieures aux possibilités instrumentales actuelles ou à celles permises par l'élargissement homogène s'il existait seul. Dans le cas de structures isotopiques l'emploi, lorsque cela est possible, de sources séparées contenant chacune un isotope pur résoud le problème mais il n'en est pas de même pour les structures hyperfines serrées qui ne peuvent être étudiées par des techniques classiques. C'est pourquoi les expérimentateurs se sont attachés à mettre au point des méthodes instrumentales permettant de s'affranchir de l'effet Doppler. La limite ultime est alors imposée

par la largeur homogène des raies (c'est-à-dire par la largeur naturelle augmentée des effets de pression) et éventuellement par la largeur de la fonction d'appareil de l'analyseur.

Les jets atomiques, les méthodes de double résonance ou de croisements de niveaux sont des exemples bien connus de solutions qui se sont révélées très fructueuses ces deux dernières décades. Elles permettent d'atteindre avec une grande précision mais dans un nombre très limité de cas la plupart des constantes spectroscopiques : structures fines et hyperfines, déplacements isotopiques, durées de vie, facteurs de Landé, constantes de relaxation, etc ...

A partir de 1960 l'apparition des lasers a été mise à profit dans quelques expériences particulières. Ainsi Javan et son équipe ont utilisé les battements entre deux lasers stabilisés en fréquence pour la mesure d'écartis isotopiques dans deux transitions laser du néon ($\lambda = 6328 \text{ \AA}$ et $\lambda = 1,15 \text{ \mu m}$) [1,2]. Dans cette expérience les deux faisceaux sont mélangés sur la surface sensible d'un même récepteur et on mesure la fréquence des battements égale à la différence des fréquences des deux lasers. Par une méthode identique Shafer a obtenu récemment une mesure très précise du déplacement isotopique de la raie laser du Xénon $\lambda = 2,02 \text{ \mu m}$ pour les isotopes 132, 134 et 136 [3]. Au Laboratoire A. Cotton, Vetter a réalisé une expérience purement optique adaptée elle aussi à la mesure précise d'écartis isotopiques très faibles [4]. La méthode appliquée aux transitions laser infrarouges des gaz rares (essentiellement argon, xénon, néon) utilise deux tubes laser alignés dans une même cavité et alternativement excités.

L'appareil analyseur est la cavité laser elle-même. Sa fonction d'appareil possède la largeur quasi-nulle d'un mode laser. Dans ces méthodes pour lesquelles la fonction d'appareil n'intervient pas on s'affranchit de l'effet Doppler en séparant les sources isotopiques et non en résolvant la structure à étudier. Elles ne sont donc pas applicables au cas des structures hyperfines.

Plus récemment sont apparues des méthodes purement optiques qui utilisent les effets d'une onde monochromatique de fréquence voisine d'une transition atomique sur les populations des niveaux de cette transition. Pour mettre en oeuvre ces méthodes le laser constitue une source de choix et en pratique la seule source possible. Grâce à l'intensité et à la cohérence de son rayonnement, il permet l'excitation d'une classe d'atomes de vitesse longitudinale bien déterminée (suivant la direction du faisceau). L'analyse en fréquence de la perturbation qu'il crée dans le profil de répartition des vitesses des atomes révèle le profil homogène, masqué par l'effet Doppler, de la transition. Parmi ces méthodes celles dites d'amincissement d'une raie de fluorescence par faisceau laser (ou F.L.N. : fluorescence line-narrowing) ont été l'objet d'études théoriques et expérimentales [5-7]. Lorsqu'une transition d'absorption est soumise au rayonnement monochromatique d'un laser les modifications apportées à son profil Doppler se répercutent sur toute autre transition qui lui est connectée par l'intermédiaire d'un niveau commun. En observation longitudinale il apparaît dans le profil Doppler de la transition couplée une résonance étroite à profil de Lorentz. Sa position dans le profil dépend du rapport des fréquences des deux transitions et de l'écart en

fréquence de l'émission laser par rapport au centre de la raie d'absorption. Sa largeur est liée aux largeurs homogènes des niveaux intéressés. Suivant le sens de l'observation (identique ou opposé au sens du faisceau laser) la résonance apparaît d'un côté ou de l'autre du profil, les deux positions étant symétriques par rapport au centre. En général la transition d'absorption est celle donnant lieu à l'effet laser. L'analyse des effets sur la transition, couplée peut se faire soit de façon passive en explorant à l'aide d'un Fabry-Perot son profil d'émission spontanée, soit de façon active en explorant son profil d'absorption à l'aide d'un second laser (laser sonde, accordable en fréquence). La figure 1 donne le principe du montage expérimental dans le cas de l'analyse passive. En pratique ces méthodes sont délicates à mettre en oeuvre. Seul le premier mode d'analyse a été appliqué et a permis la mesure d'écarts isotopiques pour le couple de raies du néon $\lambda = 1,15 \mu\text{m}$ (raie laser) et $\lambda = 6\,096 \text{ \AA}$ ainsi que la mesure de la structure hyperfine des trois niveaux correspondants (isotopes 20, 22 et 21 respectivement) [6,7]. L'analyse active qui exige l'emploi simultané de deux lasers oscillant sur des fréquences différentes et très bien définies n'a pas été utilisée jusqu'à présent mais la mise au point récente de lasers accordables en fréquence dans un large domaine, notamment dans les régions visible et proche infrarouge du spectre [8-10], permet d'espérer qu'elle le sera dans un avenir proche. Lorsqu'elle est possible elle est du reste plus intéressante que l'analyse passive puisqu'elle permet de travailler en absorption et qu'elle n'est plus tributaire de la fonction d'appareil du Fabry-Perot analyseur.

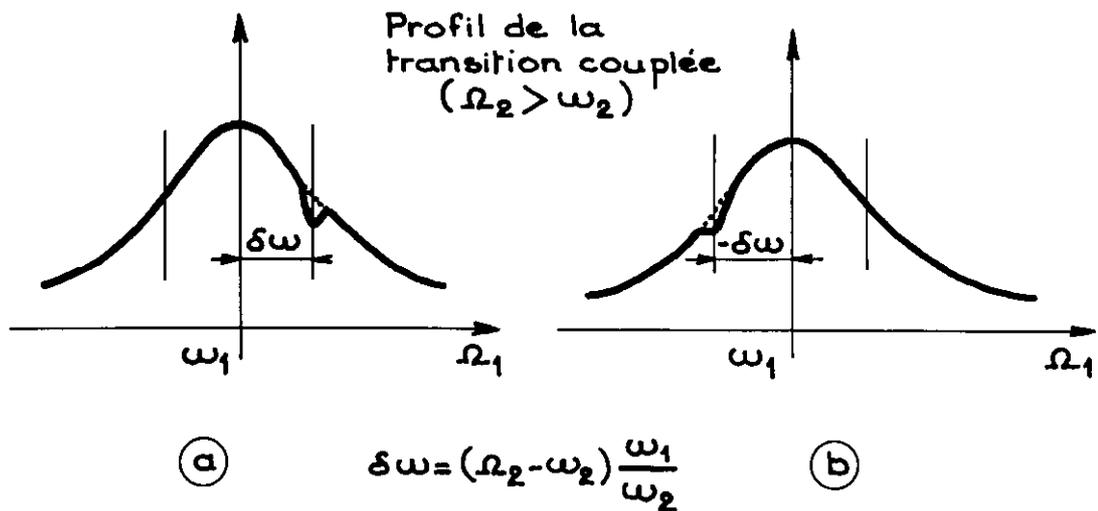
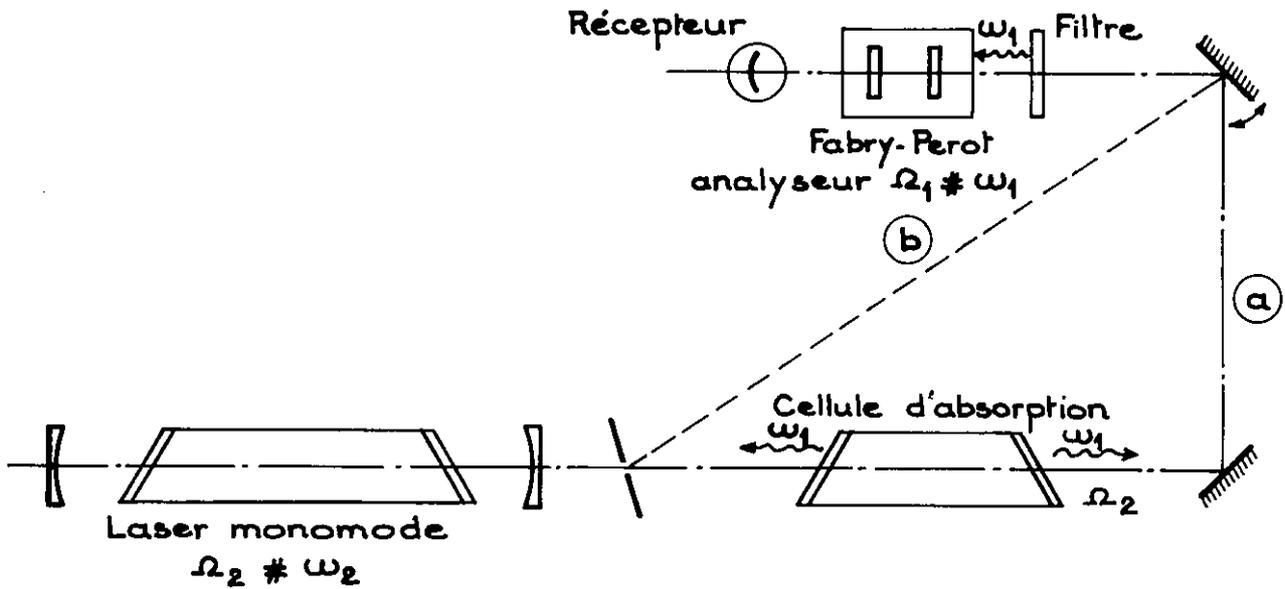
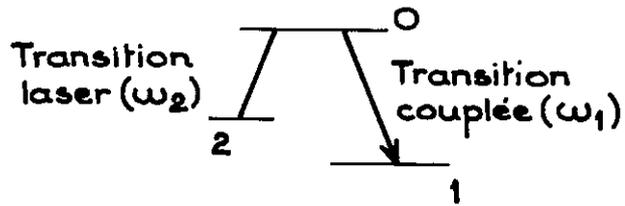
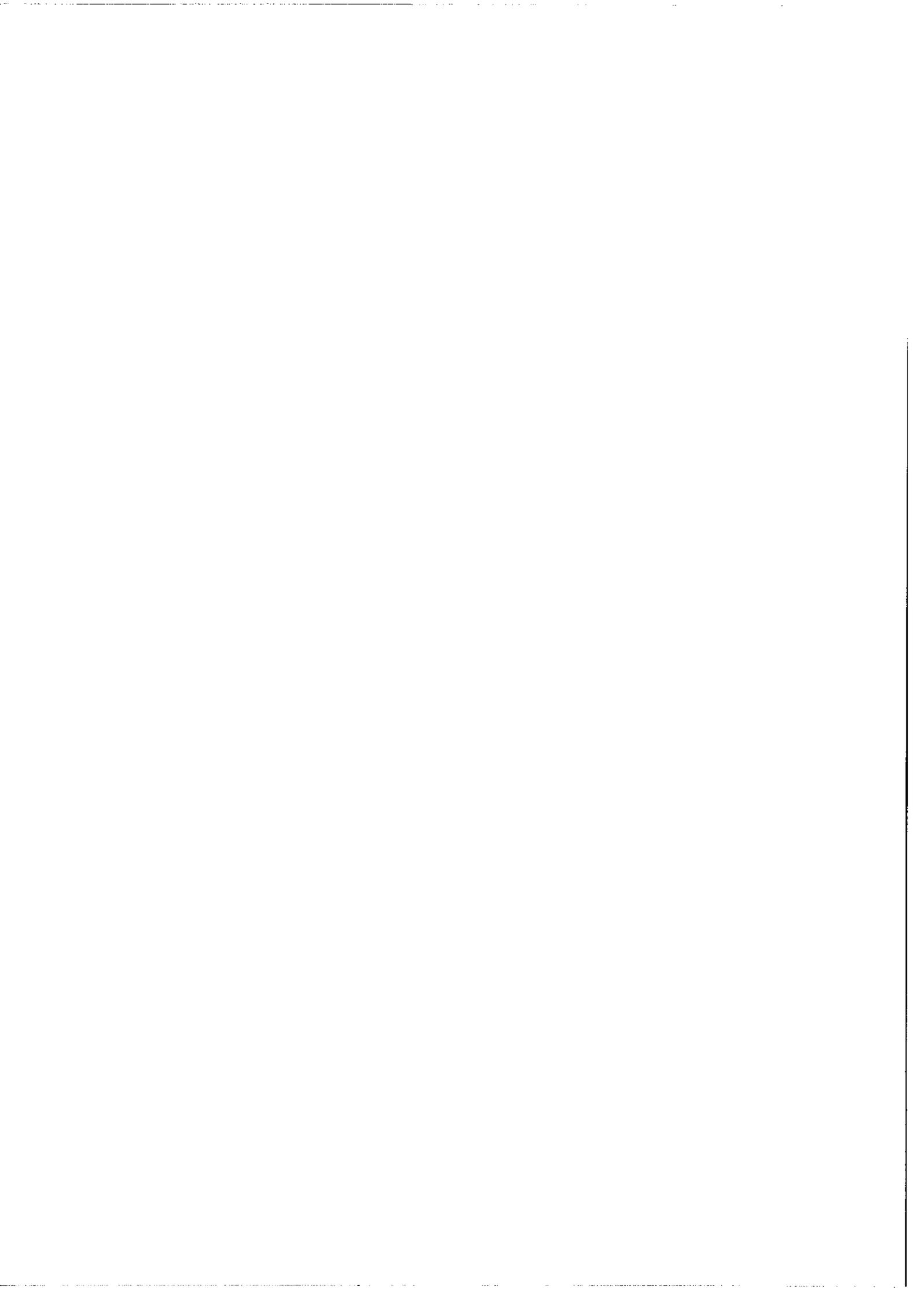


Figure 1

Amincissement d'une raie de fluorescence (ω_1) induit par effet laser (ω_2). Analyse passive avec observation dans le sens du faisceau laser (trajet (a)) ou dans le sens opposé (trajet (b)).



Dans les méthodes dites d'absorption saturée les effets perturbateurs dus au faisceau laser (faisceau saturant) sur la transition d'absorption sont étudiés à l'aide d'un second faisceau laser (faisceau sonde) sur cette même transition. De ce point de vue ces méthodes apparaissent comme un cas particulier plus simple des techniques de F.L.N. avec analyse active puisque les deux lasers sont assujettis à osciller sur la même transition. La figure 2a donne le principe de l'expérience. La perturbation due au faisceau saturant apparaît comme une diminution dans le coefficient d'absorption et son profil est approximativement le profil homogène de la raie lorsque la saturation est faible. Dans une application particulière de la méthode le même laser peut fournir les deux faisceaux grâce à un dispositif expérimental particulier (figure 2b) mais alors on ne peut analyser la perturbation qu'au voisinage du centre de la transition d'absorption. Actuellement limitées à l'étude des transitions donnant lieu suivant les conditions d'excitation soit à l'absorption soit à l'excitation laser ces méthodes vont bénéficier, elles aussi, des progrès réalisés dans la mise au point des lasers accordables.

Historiquement la saturation d'un milieu amplificateur par une onde monochromatique intense a d'abord été mise en évidence (dans le domaine optique) par le phénomène bien connu du Lamb-dip qui apparaît dans le profil d'émission d'un laser oscillant sur un seul mode dominant. L'effet complémentaire pour un milieu absorbeur (Lamb-dip inversé ou saturation de l'absorption) a été utilisé initialement pour stabiliser en fréquence les lasers à gaz. Dans ce cas on met à profit une coïncidence fortuite entre la fréquence d'émission du laser et une

fréquence d'absorption d'une vapeur moléculaire. Cette dernière est issue d'un niveau suffisamment bas pour ne pas nécessiter d'excitation de la vapeur, elle même à très faible pression. Dans ces conditions on observe des résonances de saturation de largeur beaucoup plus faible que celle du Lamb-dip habituel (quelques centaines de kilohertz ou moins) ; on gagne plusieurs ordres de grandeur sur la stabilité en fréquence par rapport au procédé classique de stabilisation sur le Lamb-dip. Dès 1968 Barger et Hall grâce à la coïncidence entre la raie $\lambda = 3,39 \mu\text{m}$ du néon et une transition du méthane ont ainsi obtenu une reproductibilité de 10^{-11} [11] . Par la suite de nombreuses autres expériences de ce type ont été réalisées et leur précision est telle que l'on envisage maintenant l'emploi des transitions laser comme étalons de fréquence et de longueur.

La grande finesse des résonances de saturation obtenues avec une vapeur moléculaire a favorisé l'application de ces techniques en premier lieu à la spectroscopie moléculaire. Parmi les nombreux résultats obtenus citons ceux de Schawlow et coll. qui ont mesuré en 1970 la structure hyperfine d'une raie de l'iode moléculaire avec une résolution supérieure à 10^8 [12] . Ces auteurs ont utilisé la coïncidence de cette raie avec l'une des raies émises par un laser à krypton ionisé. Tout récemment Hall et Bordé ont étudié la structure hyperfine d'une raie de vibration-rotation du méthane en coïncidence avec la transition $\lambda = 3,39 \mu\text{m}$ du néon avec une résolution de 10^{10} [13] .

En spectroscopie atomique la situation est a priori moins favorable pour deux raisons fondamentales. D'une part on n'a pas pu trouver

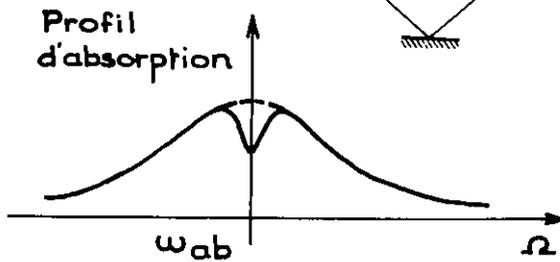
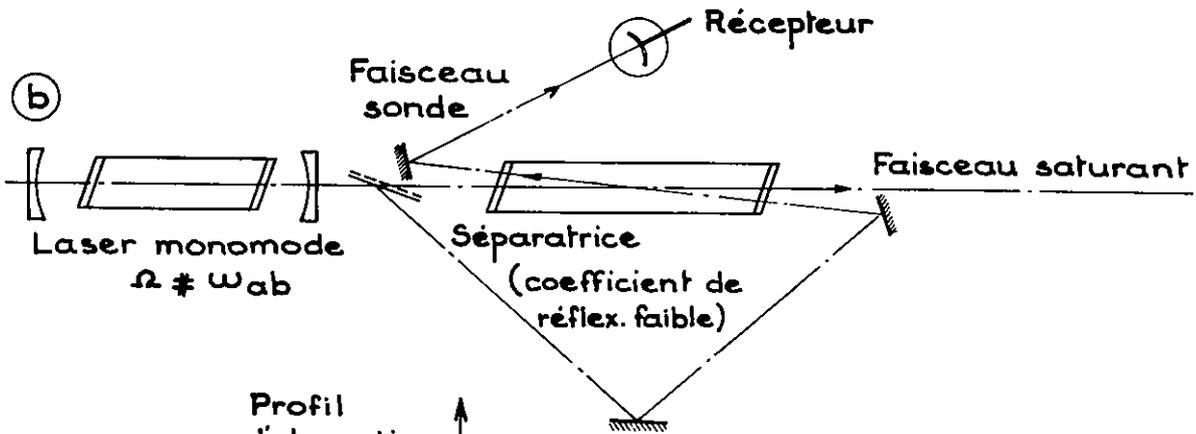
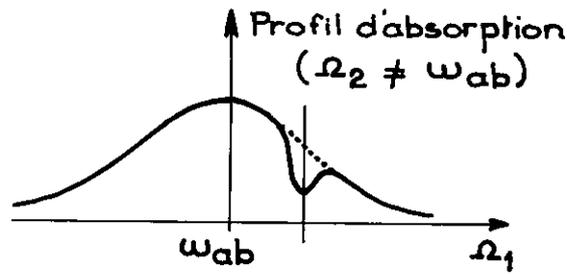
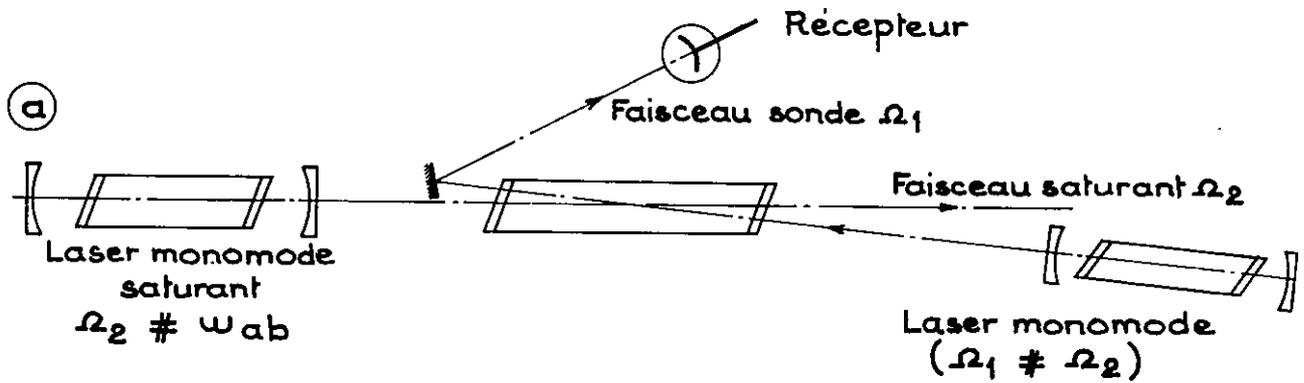
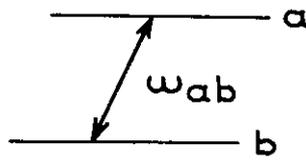
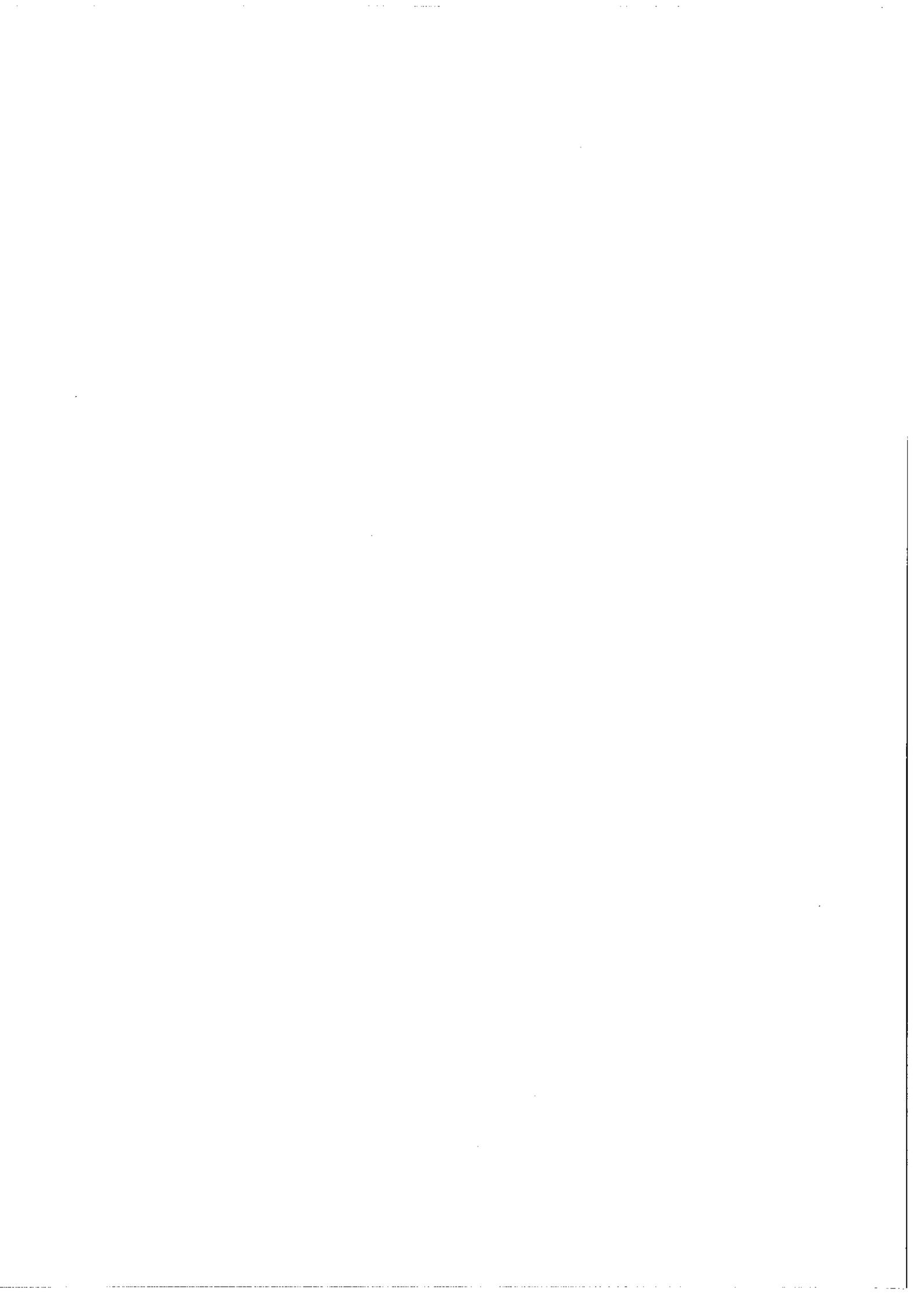


Figure 2

Absorption saturée. (a) Montage à deux lasers avec faisceau saturant à fréquence fixe. (b) Montage à un seul laser - balayage simultané du profil par les deux faisceaux.



jusqu'ici de coïncidence entre les raies laser existantes et des transitions atomiques d'absorption issues de niveaux fondamentaux ou peuplés thermiquement, d'autre part les faibles durées de vie des niveaux excités conduisent à des largeurs homogènes nettement plus importantes que pour les transitions moléculaires. L'emploi de lasers accordables lève la première difficulté et c'est pourquoi il a fallu attendre leur mise au point pour appliquer les techniques d'absorption saturée à la spectroscopie atomique. A l'aide d'un laser à colorant fonctionnant en impulsions Schawlow et coll. ont étudié la structure hyperfine des niveaux $3^2S_{1/2}$ et $3^2P_{1/2}$. La largeur des résonances observées (environ 40 MHz) correspond à peu près à deux fois la largeur naturelle. Avec la même source laser ces auteurs ont mis en évidence la structure fine de la raie H_{α} de l'hydrogène, le but final de l'expérience étant la mesure précise du Rydberg [15]. A notre connaissance ce sont les deux seules expériences d'absorption saturée réalisées en spectroscopie atomique. Encore faut-il remarquer que dans le cas du sodium il s'agit d'une expérience surtout destinée à tester les possibilités de la méthode, l'absence de dispositif d'étalonnage en fréquence ne permettant pas d'effectuer des mesures précises de position. Quant à la largeur homogène relativement grande des raies atomiques (devant les écarts en fréquence dus à l'instabilité du mode laser par exemple) elle limite le gain en résolution apporté par ces méthodes mais elle crée une situation particulièrement favorable à l'étude des profils homogènes. On peut analyser très finement les causes qui les affectent en particulier l'effet des collisions. Quelques expériences ont déjà été réalisées sur ce sujet. Shank et Schwartz (1968) puis Smith et

Hänsh (1971) ont étudié ainsi les effets des collisions sur la raie $\lambda = 6\,328\text{ \AA}$ du néon. Leur dispositif expérimental est analogue à celui de la figure 2a. Le laser saturant est stabilisé au centre de la raie d'absorption et la fréquence du laser explorateur est repérée par la méthode des battements [16, 17] .

Pour notre part nous avons appliqué les techniques de l'absorption saturée à l'étude d'une transition infrarouge du spectre de l'atome neutre du baryum. Nos travaux antérieurs sur la recherche des raies laser infrarouges émises en impulsions dans les vapeurs métalliques nous avaient montré l'existence d'une oscillation laser très intense dans la vapeur de baryum à la longueur d'onde $\lambda = 1.5\ \mu\text{m}$. La mise au point d'un laser oscillant sur cette transition en mode unique, accordable dans un petit domaine spectral, la faible étendue de la structure hyperfine calculée a priori pour cette transition (de l'ordre de la largeur Doppler) et jusqu'alors inconnue, semblaient être autant de facteurs favorables à la réalisation d'une expérience de spectroscopie par absorption saturée. En fait d'autres facteurs paraissaient compliquer la mesure de la structure hyperfine par cette méthode. La nature des niveaux excités mis en jeu (niveau supérieur résonant, niveau inférieur métastable) implique un fonctionnement du laser en impulsions et une largeur homogène élevée (environ 19 MHz pour la seule largeur naturelle). La plage spectrale balayée par le mode laser (environ 540 MHz) semblait a priori un peu faible pour explorer avec une intensité suffisante la totalité de la structure pour laquelle les calculs prévoient une étendue d'un peu plus de 560 MHz. Enfin la nature même du baryum dont la réactivité chimique est très

élevée a contribué à compliquer la mesure. Malgré ces difficultés la mise au point de cette expérience a été menée à bien. Elle a permis la mesure de la structure hyperfine du niveau métastable $6s5d \ ^1D_2$ pour l'isotope 137 ainsi que l'écart isotopique 137 - 138 de la transition. La largeur des résonances observées (environ 50 MHz) représente un gain en résolution de presque un ordre de grandeur.

Dans ce mémoire, avant d'exposer en détails cette expérience, je présente dans une première partie les résultats antérieurs obtenus dans la recherche des raies laser dans les vapeurs des alcalino-terreux. Ces travaux m'ont été précieux sur deux points essentiels. Ils m'ont permis de résoudre un certain nombre de problèmes spécifiques aux lasers à vapeurs métalliques en impulsions. Ils ont grandement facilité la mise au point du laser monomode accordable, source sans laquelle la suite de mes recherches n'aurait pu être menée à bien. Une seconde partie est consacrée à la spectroscopie d'absorption sans effet Doppler. Un premier chapitre décrit deux expériences préliminaires toutes deux effectuées sur la raie $\lambda = 1.5 \mu\text{m}$. La première concerne l'absorption simple dans un jet atomique (à vapeur de baryum) excité optiquement. La seconde concerne l'absorption saturée dans un tube à décharge. Dans un second chapitre sont exposés quelques aspects théoriques présentés par le phénomène d'absorption saturée ; il facilite la compréhension des résultats expérimentaux et permet de les comparer aux prévisions théoriques. Le troisième chapitre est consacré à l'étude expérimentale de la structure hyperfine évoquée plus haut. Enfin dans le dernier chapitre est présentée une seconde expérience d'absorption

saturée destinée à l'étude en dynamique des processus de collision.

Dans cette étude, menée sur la même transition du baryum et où est mis à profit le fonctionnement en impulsions de la source laser, on s'intéresse essentiellement aux régimes transitoires en absorption saturée.

1ère partie

LASERS A VAPEUR METALLIQUE

Comme nous allons le voir il ne sera pas ici exclusivement question de vapeurs d'éléments métalliques. Cependant par commodité nous désignerons ainsi dans la suite de cet exposé les vapeurs atomiques d'éléments solides à température ordinaire (exception faite du mercure) même dans le cas où du point de vue chimique il ne s'agit pas réellement de métaux.

Le travail exposé dans cette première partie constitue une étape intermédiaire entre des études antérieures effectuées sur les vapeurs des terres rares ⁽¹⁾ et la réalisation des expériences d'absorption saturée. En ce qui concerne la recherche proprement dite des raies laser dans les vapeurs des alcalino-terreux je rappellerai brièvement le principe du montage expérimental en dégagant les principales améliorations apportées depuis l'étude des terres-rares. Après une analyse comparative des résultats obtenus je présenterai plus en détails la mise au point du laser à vapeur de baryum accordable en fréquence. Auparavant je rappellerai quelque peu l'historique des lasers à vapeur

(1) Thèse de Doctorat de 3ème cycle soutenue à Orsay le 8 Juillet 1969.

métallique dont le développement semble maintenant assuré après une assez longue période de stagnation.

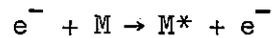
A) DEVELOPPEMENT DES LASERS A VAPEUR METALLIQUE

C'est en 1962, soit peu de temps après la mise au point du premier laser à Hélium-Néon (Javan, Bennett Jr. et Herriot, 1960), que Rabinowitz, Jacobs et Gould ont obtenu l'oscillation laser dans une vapeur métallique [18]. Ces auteurs ont observé l'oscillation continue sur deux raies laser infrarouges du Césium ($\lambda = 7,18 \mu\text{m}$ et $\lambda = 3,2 \mu\text{m}$). L'inversion de population était obtenue par pompage optique grâce à la coïncidence fortuite entre une raie intense de l'hélium ($\lambda = 3\ 888 \text{ \AA}$) et l'une des raies de résonance du Césium ($6s^2 S_{1/2} \rightarrow 8p^2 P_{1/2}$). Par suite de difficultés techniques liées en particulier aux propriétés chimiques de cet élément ce laser a rapidement été abandonné. En 1963 Ridgen et White obtenaient à leur tour un effet laser sur deux raies infrarouges dans la vapeur de mercure [19]. Dans ce cas l'inversion de population est surtout due à une excitation électronique directe. Les processus de collisions, plus généraux que le pompage optique, ont permis à d'autres auteurs d'observer un peu plus tard un assez grand nombre de raies laser dans cette vapeur aussi bien en émission continue qu'en impulsions (spectres I, II et III du mercure) [20]. Malgré ces premiers succès, les lasers à vapeur métallique ne se sont guère développés jusqu'en 1965 alors que pendant la même période les lasers à gaz rares connaissent un essor considérable et fournissent déjà de très nombreuses raies dans les domaines visible et infrarouge du

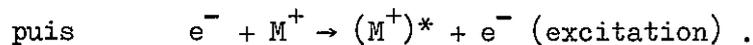
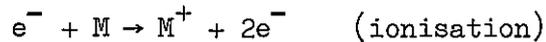
spectre. La technologie plus simple de ces derniers, concrétisée par l'exploitation commerciale du laser à hélium-néon puis du laser à argon ionisé, explique en grande partie la désaffection envers les premiers lasers à vapeur métallique.

Ceux-ci devaient connaître un certain essor avec l'apparition en 1965 d'une nouvelle classe de lasers à vapeur métallique fonctionnant en impulsions selon un mécanisme qui produit une inversion de population nécessairement brève. L'un des intérêts de ces sources, parfois appelées lasers cycliques, réside dans leur haute efficacité. Ce sont des lasers de ce type que nous avons nous-même développé à partir de 1968 dans les vapeurs de quelques terres rares puis d'alcalino-terreux. On peut définir l'efficacité d'un laser oscillant en continu par $\eta = \alpha \frac{E_L}{E_{sup}}$ où α est la fraction de l'énergie de pompage effectivement utilisée à peupler le niveau laser supérieur d'énergie E_{sup} et où E_L est l'énergie d'un photon de l'émission laser [21]. Pour des sources du type hélium-néon les niveaux intéressés sont généralement élevés; α et $\frac{E_L}{E_{sup}}$ sont très inférieurs à l'unité; l'efficacité ne peut guère être supérieure à 10^{-3} environ. Les résultats sont radicalement différents dans les lasers cycliques pour lesquels on a la situation suivante: le niveau laser supérieur est fortement connecté au niveau fondamental par une transition dipolaire électrique (niveau de résonance dans le cas idéal) et est peuplé par collision électronique directe; le niveau laser inférieur est métastable. Dans ces conditions une bonne partie de l'énergie de la décharge sert à peupler le niveau résonant (α peut atteindre des valeurs proches de 0,5) et puisqu'il

s'agit des niveaux les plus profonds E_L et E_{sup} sont généralement du même ordre de grandeur ; leur rapport peut lui aussi atteindre des valeurs de l'ordre de 0,5. En fait pour ces lasers il faudrait encore pondérer η par le facteur $\frac{g_{inf.}}{g_{sup.} + g_{inf.}}$ (g poids statistiques des niveaux) qui exprime qu'une partie de la population du niveau supérieur est inutilisée puisque l'effet laser cesse dès qu'il y a égalité des populations. Ce facteur toujours voisin de l'unité ne modifie pas les ordres de grandeur précédents et finalement η peut atteindre aisément 0,2. Malheureusement un tel système ne peut fonctionner de façon continue ; une excitation par impulsions électriques est nécessaire. En effet en première approximation la section efficace de collision pour des chocs électrons-atomes est proportionnelle à la force d'oscillateur de la transition. Sous l'effet de l'impulsion électrique (très brève) il y a donc d'abord peuplement rapide du niveau résonant. L'inversion de population s'établit très vite. Le niveau métastable ne se peuple qu'ensuite, en partie au détriment du niveau résonant ; ce processus est accéléré par l'effet laser lui-même qui permet un prélèvement d'énergie aux dépens du rayonnement de résonance et détruit rapidement l'inversion de population. Le cycle peut recommencer dès que la population du niveau inférieur est à nouveau négligeable (essentiellement par suite des collisions et de la migration des atomes). La fréquence maximum de répétition des impulsions est donc limitée par la constante de relaxation du métastable (valeur typique : quelques kilohertz). C'est selon ce mode de fonctionnement décrit symboliquement pour l'excitation par l'expression :



(M et M* pour l'atome de métal dans l'état fondamental puis excité)
 qu'ont été réalisés les lasers à vapeur de cuivre, de manganèse, de
 plomb, etc ... dont quelques uns parmi les plus caractéristiques sont
 présentés dans le tableau 1 (dans ce tableau pour plus de clarté nous
 nous sommes volontairement limité aux raies les plus intenses pour cha-
 que élément). Quelques raies des spectres ionisés une fois ont égale-
 ment été obtenues suivant un processus analogue mais l'efficacité est
 réduite par la nécessité de ioniser d'abord le milieu. Symboliquement
 le processus qui s'établit alors en deux étapes s'écrit :



Les quelques valeurs numériques qui suivent donnent une idée des ca-
 ractéristiques des lasers cycliques.

Transition du Cu I $\lambda = 5\ 105,5 \overset{\circ}{\text{Å}}$: puissance crête 40 KW
 gain à 1 500° C : 58dB/m
 durée de l'impulsion 16nsec
 $\eta / \alpha = 38\%$

Transition du Pb I $\lambda = 7\ 229 \overset{\circ}{\text{Å}}$: puissance crête 2 KW
 gain à 1 030° C : 6dB/cm
 durée de l'impulsion 15nsec
 $\eta / \alpha = 24\%$

D'un point de vue purement spectroscopique ces sources sont intéres-
 santes dans la mesure où elles permettent d'obtenir l'oscillation laser
 dans des cas distincts de ceux des lasers à émission continue pour

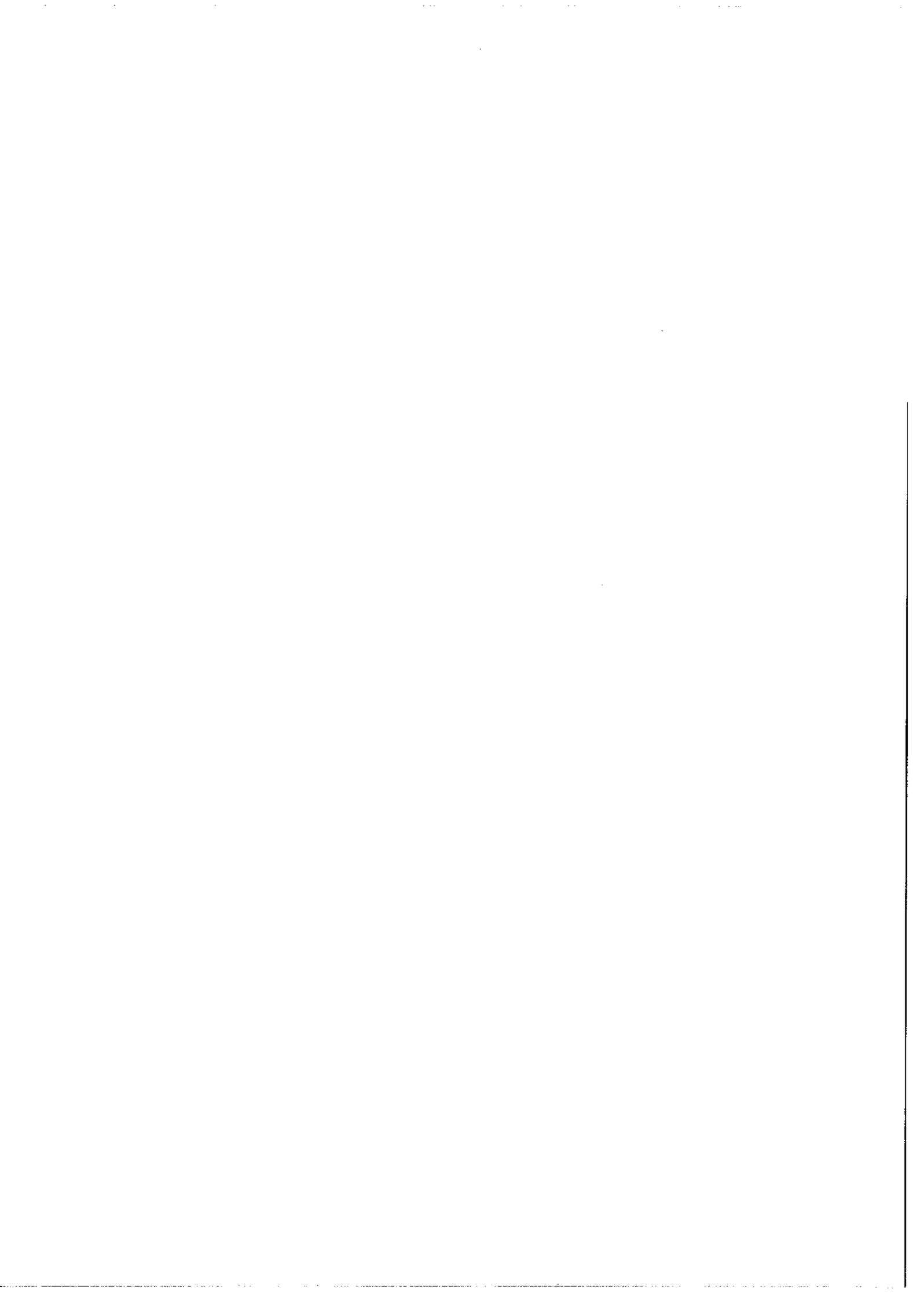
lesquels il est essentiel d'avoir un niveau inférieur à durée de vie faible. Cependant leur fonctionnement en impulsions est un inconvénient sérieux, ne serait-ce que par les instabilités d'intensité qui en résultent. De plus la situation idéale que nous avons évoquée (niveau supérieur résonant, niveau inférieur métastable) représente un très petit nombre de cas. Il faut noter aussi que le coefficient α dépend beaucoup de la rapidité avec laquelle est fournie l'énergie électrique. Pour être efficace l'impulsion électrique doit avoir un front de montée très raide ce qui en pratique n'est pas toujours réalisable. Ces difficultés expliquent le développement limité de ces lasers (actuellement il semble que seuls les lasers à cuivre et à manganèse soient encore étudiés) qui ont donné lieu à quelques applications spectroscopiques. Silfvast et Fowles ont observé à l'aide d'un Fabry-Perot la structure hyperfine de la raie du manganèse $\lambda = 5\ 341\ \overset{\circ}{\text{Å}}$ [29]. Deech, Cole et Sanders ont mesuré sur la raie du plomb $\lambda = 7\ 229\ \overset{\circ}{\text{Å}}$ émise en superradiance, les écarts entre les isotopes 206 - 207 - 208 [30]. Enfin nous même avons mesuré les écarts isotopiques pour six raies laser de l'ytterbium (isotopes 172 - 174 - 176) [voir annexe 1 p. 503].

A partir de 1967 apparaît encore une nouvelle classe de lasers à vapeur métallique donnant cette fois une émission continue. Bien que mes travaux ne concernent qu'accessoirement cette catégorie de sources leur développement très important, surtout depuis ces trois dernières années, justifie que soient présentées ici leurs principales caractéristiques. Il s'agit uniquement de raies appartenant au spectre du

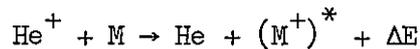
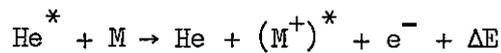
Elément	Principales transitions observées		Température de fonctionnement (°C)	Réf.
	$\lambda(\text{Å})$	Classification		
Pb I	7229	$6p\ 7s(^3P_1) \rightarrow 6p^2(^1D_2)$	~ 900	[22]
Mn I	5341	$\gamma(^6P_{7/2}) \rightarrow \alpha(^6D_{9/2})$	~ 1200	[23]
Cu I	5105,5 5782	$3d^{10}4p(^2P_{3/2}) \rightarrow 3d^94s^2(^2D_{5/2})$ $3d^{10}4p(^2P_{1/2}) \rightarrow 3d^94s^2(^2D_{3/2})$	~ 1500	[24]
Ca I	55457	$4p(^1P_1) \rightarrow 3d(^1D_2)$	> 550	[25]
Ca II	8542 8662	$4p(^2P_{3/2}) \rightarrow 3d(^2D_{5/2})$ $4p(^2P_{1/2}) \rightarrow 3d(^2D_{3/2})$	> 700	[26]
Sr I	64.560	$5p(^1P_1) \rightarrow 4d(^1D_2)$	> 460	[25]
Sr II	10.330	$5p(^2P_{3/2}) \rightarrow 4d(^2D_{5/2})$		
	10.918	$5p(^2P_{1/2}) \rightarrow 4d(^2D_{3/2})$		
Ba I	15.000	$6p(^1P_1) \rightarrow 5d(^1D_2)$	~ 600	[27]
Tl I	5350	$7s(^2S_{1/2}) \rightarrow 6p(^2P_{3/2})$	~ 800	[28]

Tableau 1

Exemples typiques de raies laser observées en impulsion dans quelques lasers "cycliques".



métal ionisé une fois. Pour la plupart observées antérieurement en impulsions, elles apparaissent en émission continue presque exclusivement en présence d'hélium. Ce gaz, à une pression de quelques torr en général, joue ici non seulement le rôle de gaz porteur mais est essentiel dans le processus d'excitation qui conduit à l'inversion de population. Les expériences effectuées par différents auteurs ont montré que les deux principaux mécanismes qui entrent en jeu sont l'ionisation Penning et l'ionisation par transfert de charge. On peut symboliquement les représenter par les expressions suivantes :



Dans ces expressions He^* représente un état métastable de l'hélium ($2s \ ^3\text{S}_1$ par ex.), $(\text{M}^+)^*$ un état ionisé excité de l'atome de métal et He^+ , He et M correspondent aux états fondamentaux. ΔE est la différence d'énergie entre l'état initial et l'état final. La première raie observée grâce à l'un de ces processus est la raie du Cadmium II $\lambda = 4\ 416 \overset{\circ}{\text{Å}}$ (ionisation Penning) par Fawles et Hopkins [31]. Par la suite de nombreuses raies laser ont été obtenues ainsi dans cette vapeur de même que dans le zinc, le magnésium, l'iode, l'arsenic, le sélénium et le tellure (spectres II). Les cas du sélénium (46 raies) et du tellure (31 raies) sont particulièrement intéressants ; le très grand nombre de raies laser émises couvre l'ensemble du spectre visible et le proche infrarouge (de $4\ 468 \overset{\circ}{\text{Å}}$ à $12\ 588 \overset{\circ}{\text{Å}}$) [32]. Ces résultats ont encouragé beaucoup d'auteurs à rechercher des configurations de tubes à décharge particulièrement bien adaptés au fonctionnement de ce type de lasers ioniques. La principale difficulté à vaincre est due

au phénomène de cataphorèse qui produit une migration rapide du métal vers la cathode. L'effet est très important pour ces sources qui fonctionnent avec des courants de décharge de l'ordre de quelques centaines de milliampères pour des tubes de 3 à 4 mm de diamètre environ. En fait ce phénomène est souvent mis à profit pour obtenir une pression de vapeur métallique bien homogène. Actuellement on sait réaliser des tubes de conception simple et à durée de vie comparable à celle des lasers à gaz rares. Les schémas suivants regroupent en deux catégories les principales réalisations dans ce domaine (figures 3 et 4).

1ère catégorie : tubes "classiques" à décharge longitudinale.

- Le modèle le plus simple (Goldsborough 1969) [33] utilise un tube capillaire à flux de cadmium contrôlé. Un flux homogène de vapeur métallique est assuré grâce à la cataphorèse ; on peut le modifier en agissant sur la haute tension ou sur le chauffage de la réserve de métal. Le courant de décharge suffit pour maintenir la température du tube à une valeur suffisamment élevée (220°C à 240°C dans le cas du cadmium) pour éviter le dépôt du métal sur ses parois.

- Par rapport au précédent, le modèle à recirculation (Herquist 1970) [34] offre l'avantage d'une faible consommation de métal, ce qui est intéressant dans le cas où on utilise des isotopes purs. De plus le rayonnement émis est d'un niveau de bruit très faible. La structure de l'ensemble comporte un tube capillaire central entouré d'une enceinte de diamètre très supérieur à celui du capillaire. Comme dans le modèle Goldsborough la cataphorèse assure une densité homogène de vapeur métallique dans le tube central ; elle produit une surpression pour cette

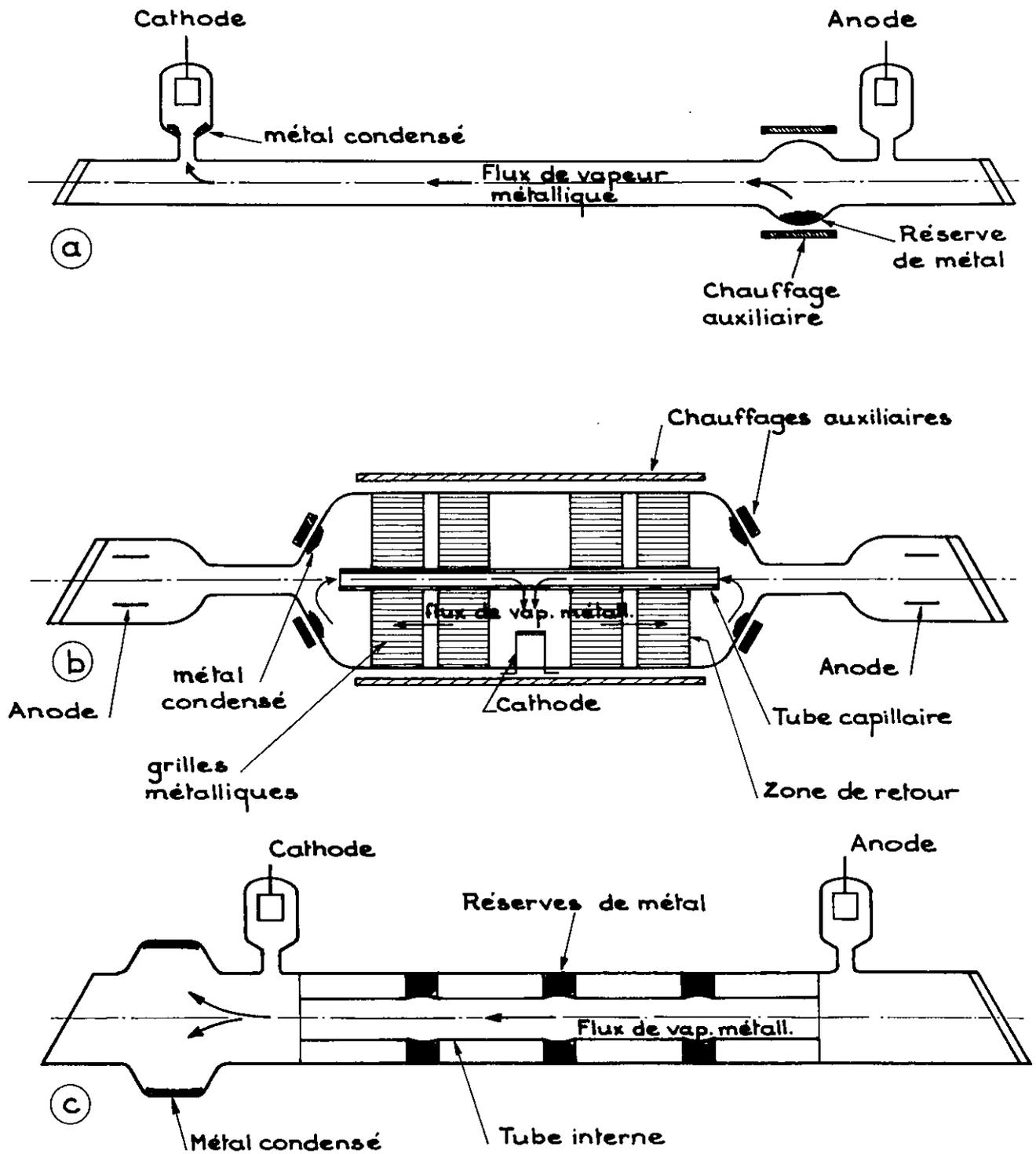
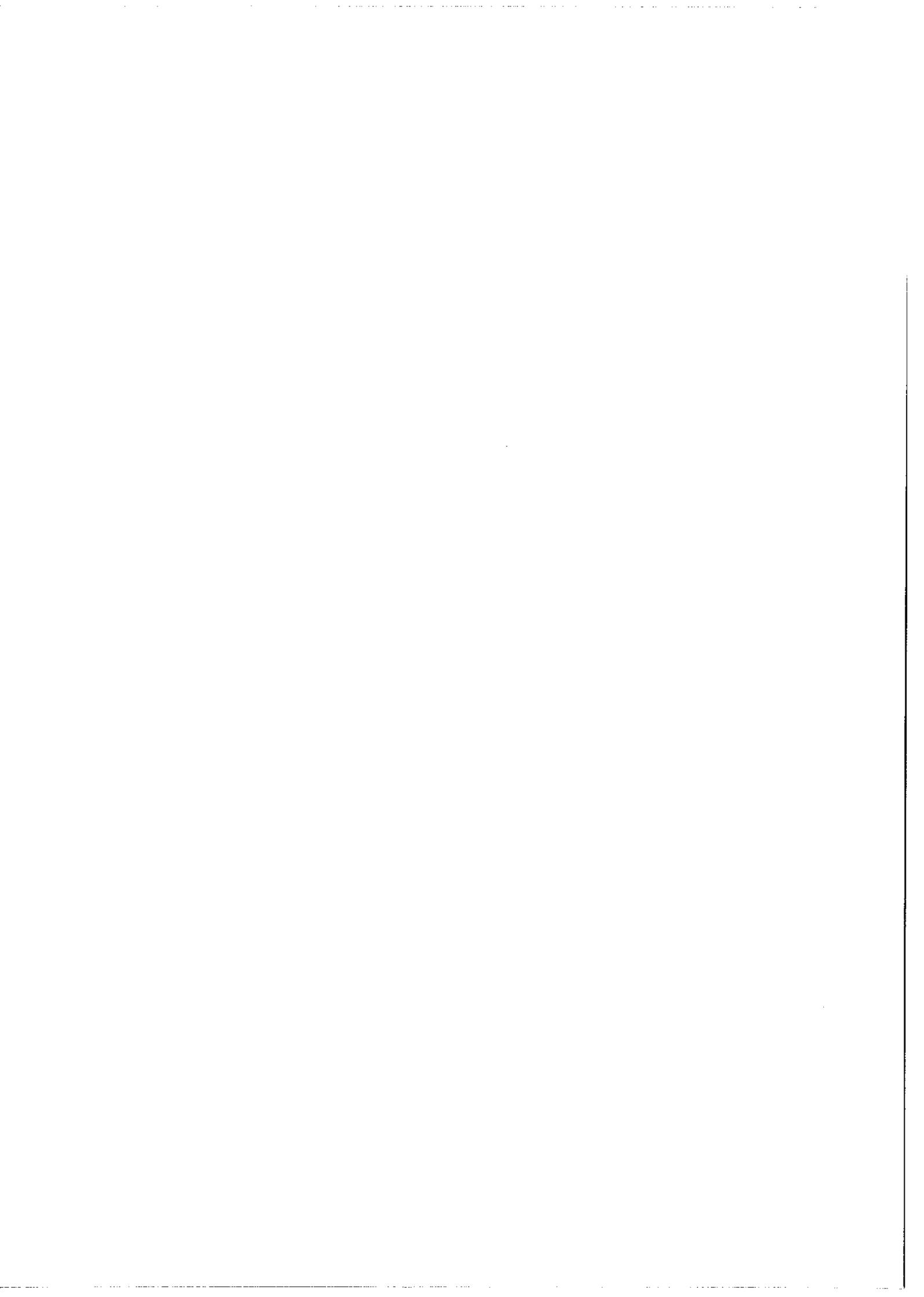


Figure 3

Lasers ioniques types He-Cd à décharge longitudinale :
 (a) modèle Goldsbrough (b) modèle Hernquist (c) modèle
 Silfvast et Szeto.



vapeur dans la région de la cathode . Grâce à l'enceinte externe le métal peut retourner vers la région anodique à travers une structure métallique (grilles) dont le rôle est d'éviter le passage de la décharge dans cette région ; un chauffage externe supplémentaire est nécessaire pour éviter tout dépôt de métal dans la région extérieure.

- Un troisième modèle plus simple que le précédent a été développé par Silfvast et Szeto (1971) [35]. Dans ce dispositif le métal est disposé suivant quelques segments annulaires régulièrement espacés. Le courant de décharge chauffe suffisamment les segments pour produire la vapeur métallique ; aucun autre système de chauffage n'est nécessaire. Avec une pression d'hélium appropriée ce modèle simplifié permet, lui aussi, d'obtenir une oscillation laser à faible bruit.

2ème catégorie : tubes à décharge transversale.

- Dans ces tubes de conception radicalement différente de celle des précédents on n'utilise plus l'effet de cataphorèse pour produire une vapeur métallique homogène. Dans le modèle dit à cathode creuse fendue (Schuebel 1970) [36] une répartition continue de métal dans le tube à décharge suffit, par diffusion, à obtenir une bonne homogénéité. Le montage comporte deux cylindres métalliques coaxiaux. Le cylindre interne (cathode) est fendu sur toute sa longueur . Le cylindre externe joue le rôle d'anode unique. Le métal, sous forme de fil, est disposé sur l'anode face à la fente cathodique. Un chauffage auxiliaire autour de l'anode permet de disposer de la tension de vapeur métallique voulue, indépendamment du chauffage dû au courant de décharge.

- Le modèle utilisé par Piper, Collins et Webb (1972) [37] est à

anodes multiples (modèle développé également par Sugarawa et coll. [38]). Il s'agit d'un ensemble comportant trois parties séparables. La partie centrale est un tube métallique jouant le rôle de cathode et comporte plusieurs anodes régulièrement espacées ; chacune d'elle possède une résistance de charge ajustable pour équilibrer les différentes zones de la décharge. Un flux continu d'hélium, du centre vers les extrémités du tube, permet une répartition homogène de la vapeur métallique. Cette dernière est produite dans une cellule annexe reliée au centre du tube à décharge ; un chauffage indépendant de la cellule permet le contrôle de la pression de vapeur métallique pour un flux d'hélium donné.

Cette nouvelle classe de lasers ioniques émettant en continu un très grand nombre de raies depuis le proche infrarouge jusque dans le proche ultra violet (il existe une raie laser du cadmium II à $\lambda = 3\ 250\ \text{\AA}$) présente beaucoup d'intérêt dans le domaine de la chimie moléculaire. Leur fiabilité (concrétisée par la commercialisation du laser à cadmium) les rend parfaitement utilisables comme sources spectroscopiques. Ainsi en 1968 Hopkins et Fowles ont mesuré les écarts entre les isotopes 112 - 114 et 116 du cadmium sur la raie laser $\lambda = 4\ 416\ \text{\AA}$ [39]. Récemment la mesure de l'écart 112 - 114 a été précisée par une méthode un peu différente mais utilisant aussi deux lasers contenant chacun un isotope pair de cadmium [40]. Enfin, par les différents mécanismes de collisions qu'ils mettent en jeu pour conduire à l'inversion de population, ces lasers sont également intéressants comme moyen d'étude de ces processus de collisions.

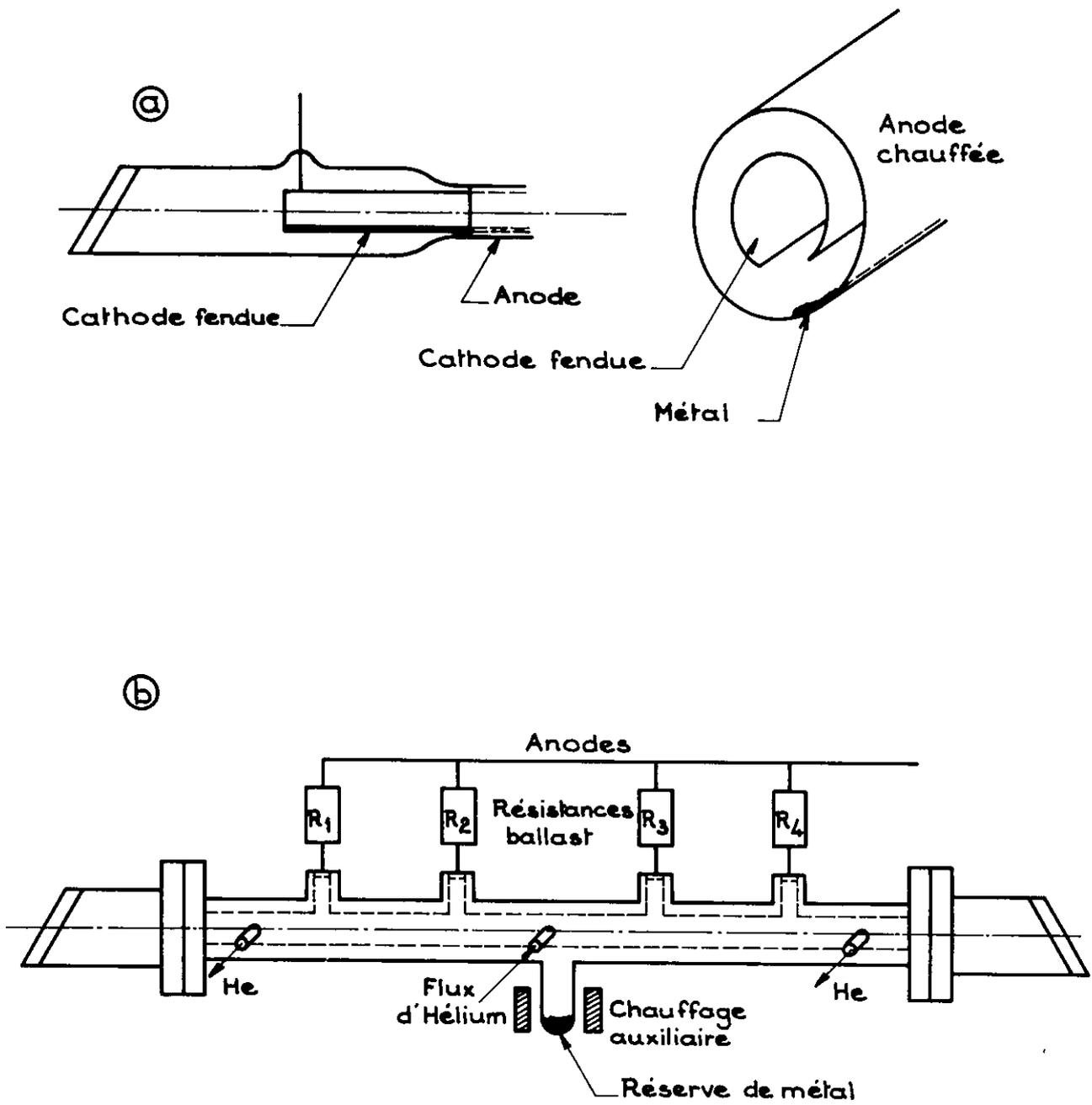
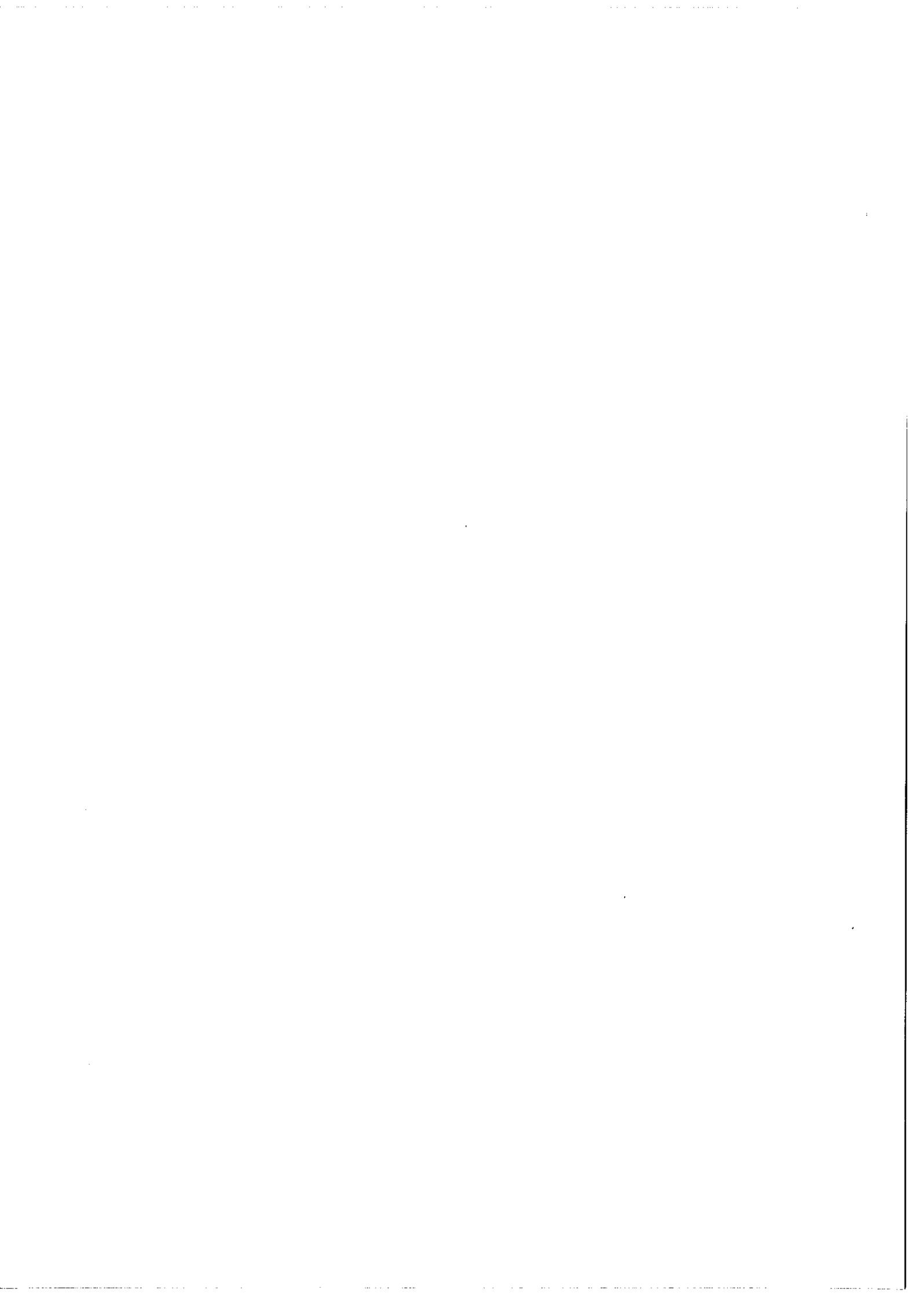


Figure 4

Lasers ioniques types He-Cd à décharge transversale :
 (a) modèle Schuebel (b) modèle Piper, Collins et Webb .



B) RAIES LASER DANS LES VAPEURS DES ALCALINO-TERREUX.

Après mes travaux sur les terres rares, il m'a semblé intéressant de prolonger la recherche systématique des raies laser des vapeurs métalliques en appliquant aux alcalino-terreux les mêmes techniques. En effet ces derniers présentent des spectres plus simples et plus aisément comparables lorsque l'on passe d'un élément à l'autre. De plus pour certains d'entre eux (baryum, strontium, calcium) on pouvait espérer obtenir des effets laser du même type que ceux observés dans les lasers cycliques. J'ai choisi d'étudier le baryum, le strontium puis le magnésium qui présentent, en ce qui concerne la disposition relative des niveaux, trois cas de figure sensiblement différents. Les résultats de ces recherches ont été publiés dans deux articles que l'on trouvera en annexe (annexes I et II). Je ne reviendrai donc pas ici en détails sur ces travaux. Je me contenterai d'en rappeler les points essentiels.

1. DISPOSITIF EXPERIMENTAL.

Le montage comporte principalement le laser source, un monochromateur de haute résolution pour la mesure des longueurs d'onde et un ensemble de détection des raies laser (fig. 5).

- Le laser source est constitué d'un tube à décharge en alumine de haute pureté. Cet élément résiste bien aux températures élevées. Il est chimiquement très stable ce qui est important étant donnée la grande réactivité des alcalino-terreux notamment à chaud. A cet égard le quartz a des propriétés moins intéressantes et bien qu'il résiste

aux températures nécessaires à cette étude et qu'il soit plus facile d'emploi nous avons dû l'abandonner. Les parties extrêmes du tube, situées hors de la zone chauffée, sont simplement en pyrex. Un système démontable à joints toriques refroidis assure l'étanchéité de l'ensemble. La partie centrale en alumine est placée dans un four à température régulée. La cavité est en configuration confocale. Elle est constituée de deux miroirs revêtus d'une couche d'or. L'énergie est extraite à l'aide d'une lame à faces parallèles en fluorine inclinée à 45° de l'axe de la cavité. Enfin l'excitation électrique par impulsions est fournie par décharge de capacité. L'intensité de crête des impulsions peut atteindre plusieurs centaines d'ampères pour un taux de répétition maximum de l'ordre de 250 Hz.

- Certaines raies laser peuvent être connectées entre elles par un niveau commun. Lorsque celui-ci est le niveau supérieur (ou inférieur) des transitions il se peut que l'une d'entre elles domine et nuise à l'oscillation des autres. Dans le cas d'une cascade (niveau intermédiaire commun) il arrive au contraire que l'inversion de population pour la transition inférieure soit due essentiellement à l'effet de la transition supérieure : les deux raies oscillent simultanément. Il est donc intéressant de pouvoir "déconnecter" des raies laser à niveau commun soit pour obtenir l'oscillation sur de nouvelles raies, soit pour montrer l'existence d'un effet de cascade. La mise en évidence d'un niveau commun peut aussi constituer un moyen d'identification et servir à déterminer un niveau inconnu. Pour obtenir l'oscillation sur une seule transition à la fois il existe deux solutions simples bien connues : l'emploi de miroirs sélectifs à couches multidiélectriques

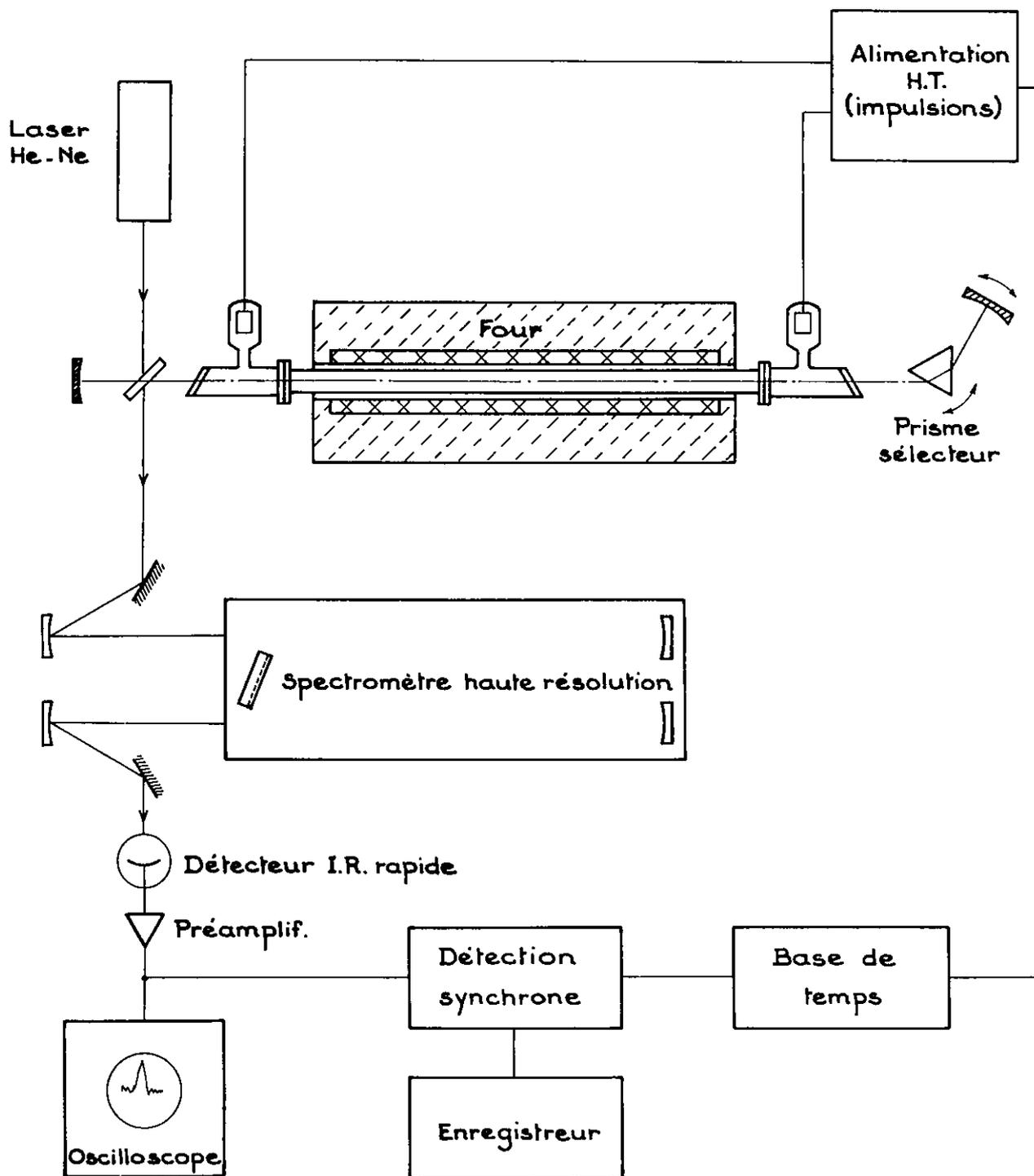
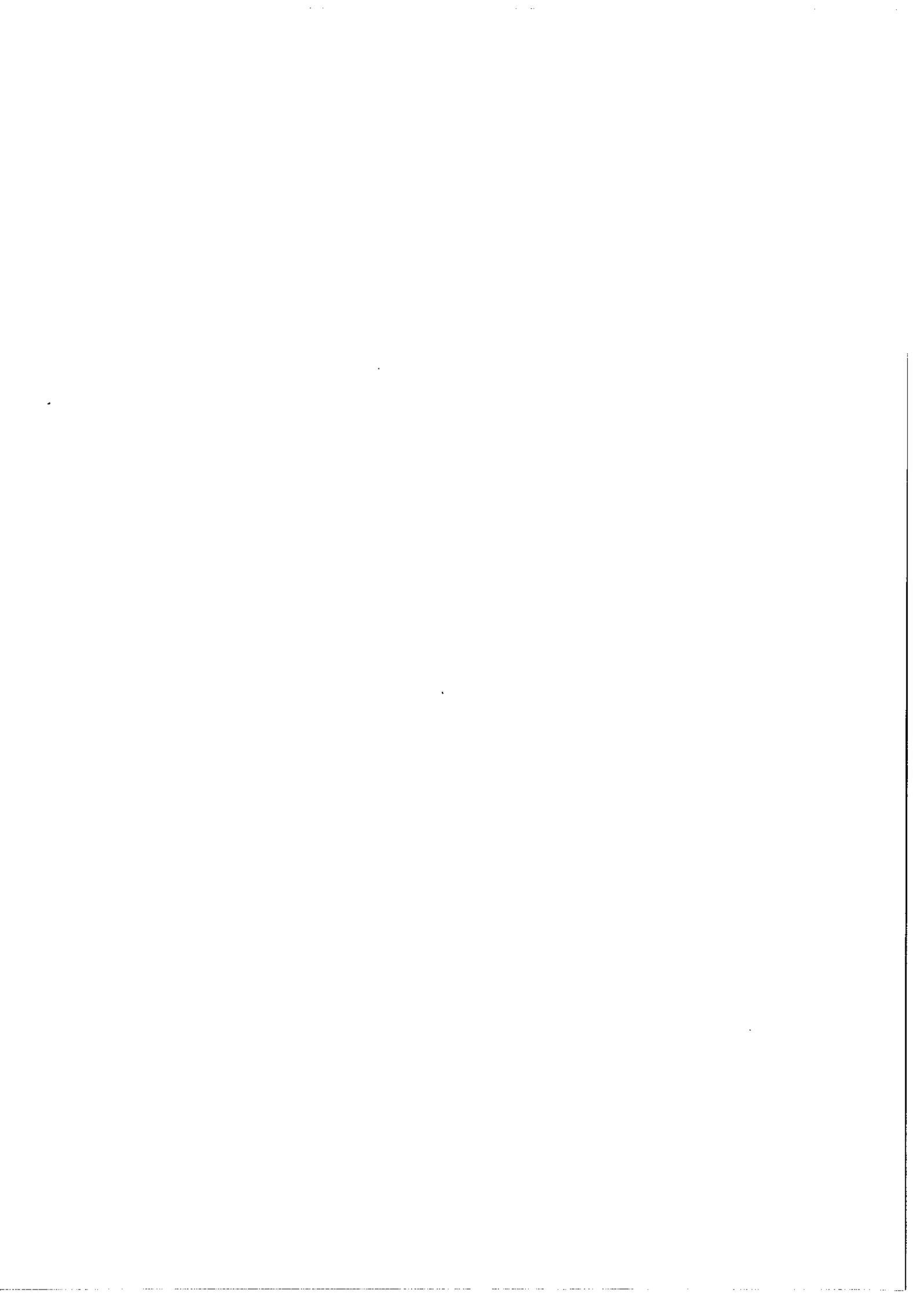


Figure 5

Montage expérimental pour la recherche des raies laser et la mesure de leur longueur d'onde.



ou d'un prisme sélecteur placé dans la cavité (les deux solutions sont du reste compatibles et peuvent être utilisées simultanément). La plupart du temps nous avons utilisé le système à prisme. Il offre l'avantage d'être plus sélectif et utilisable sans changement de miroirs dans un domaine spectral étendu. Les pertes supplémentaires qu'il introduit dans la cavité sont faibles et peuvent être compensées, si cela est nécessaire, par l'adjonction de miroirs sélectifs à très haut pouvoir réflecteur. Pour être dans les conditions de pertes minimales nous avons calculé l'angle du prisme correspondant à la fois, pour la longueur d'onde moyenne du domaine spectral exploré, au minimum de déviation et à l'incidence de Brewster. On est conduit ainsi à un prisme de grand angle (66° pour un prisme en fluorine à la longueur d'onde $\lambda = 3,5 \mu\text{m}$) donc à un système assez sélectif. Un dispositif mécanique permet une rotation simultanée du prisme et du miroir correspondant par l'intermédiaire d'une vis micrométrique. La rotation du miroir est double de celle du disperser. Ainsi, quelle que soit la région spectrale sélectionnée, on reste toujours au minimum de déviation. De plus, d'une extrémité à l'autre du spectre exploré, la rotation totale du prisme est faible (de l'ordre de 1° pour le domaine $1 \mu\text{m}$ à $6 \mu\text{m}$) et on reste proche de l'incidence de Brewster (pertes nulles par réflexion pour la bonne polarisation). La figure n° 6 montre l'ensemble du dispositif⁽¹⁾. Nous l'avons toujours utilisé associé au monochromateur extérieur. Il

(1) Un dispositif identique a également été utilisé au laboratoire par Liberman [41].

est donc nécessaire d'étalonner en longueur d'onde la position du prisme, elle-même repérée grâce à la vis micrométrique. Pour l'étalonnage nous avons utilisé des raies laser des gaz rares de longueur d'onde connue émises par notre tube à décharge dans des expériences préalables.

- L'identification des raies laser observées nécessite une mesure précise de leur longueur d'onde. Dans ce but nous avons utilisé un spectromètre à réseau à haute résolution. Dans la dernière partie de ces recherches, consacrée à l'étude du magnésium, nous avons disposé du monochromateur Jobin-Yvon THR² (focale 1 500 mm). Avec cet appareil, à balayage linéaire en longueur d'onde, nous avons pu améliorer la précision des mesures en enregistrant à la fois les raies laser à identifier et la raie laser de l'hélium-néon $\lambda = 6\,328\text{ \AA}$ dans des ordres successifs du réseau infra-rouge (réseau à 51 traits/mm, blazé à 24 μm). Ce procédé simple, utilisé pour les raies oscillant en continu, donne par interpolation linéaire une précision sur la longueur d'onde de l'ordre de $2 \cdot 10^{-5}$ ce qui en général suffit à l'identification. Celle-ci est effectuée en comparant les longueurs d'onde mesurées à celles calculées à partir des niveaux connus de l'élément étudié. Le calcul est effectué sur ordinateur à l'aide d'un programme de différences ⁽¹⁾.

- La détection des raies laser utilise un photorécepteur infrarouge rapide (en général une cellule photoresistive Germanium - Cr). Le signal qu'il fournit est visualisé à l'oscilloscope ce qui suffit pour une mesure de la longueur d'onde par lecture directe. Une mesure plus pré-

(1) Programme écrit au laboratoire par J. Bauche et A. Carlier.

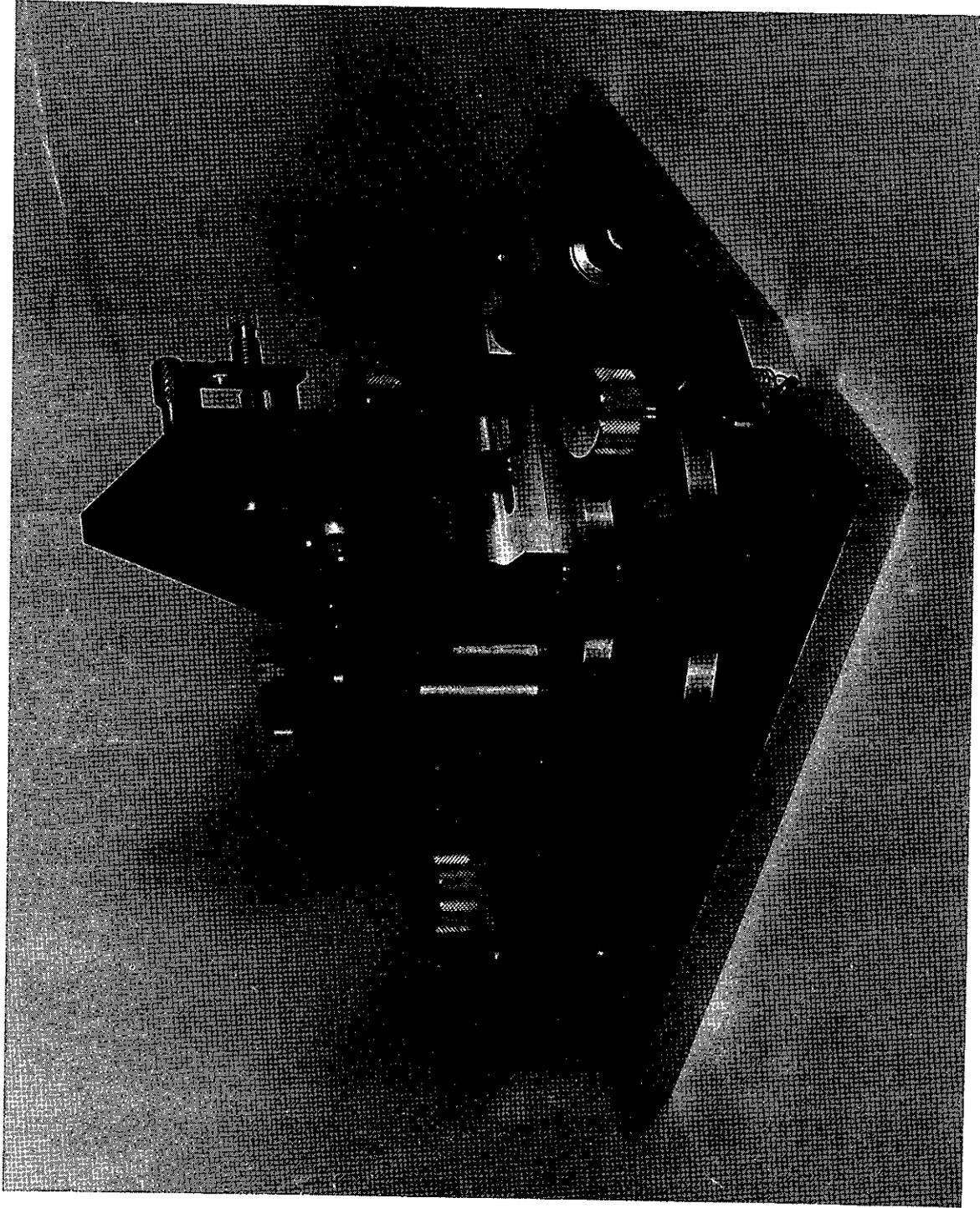
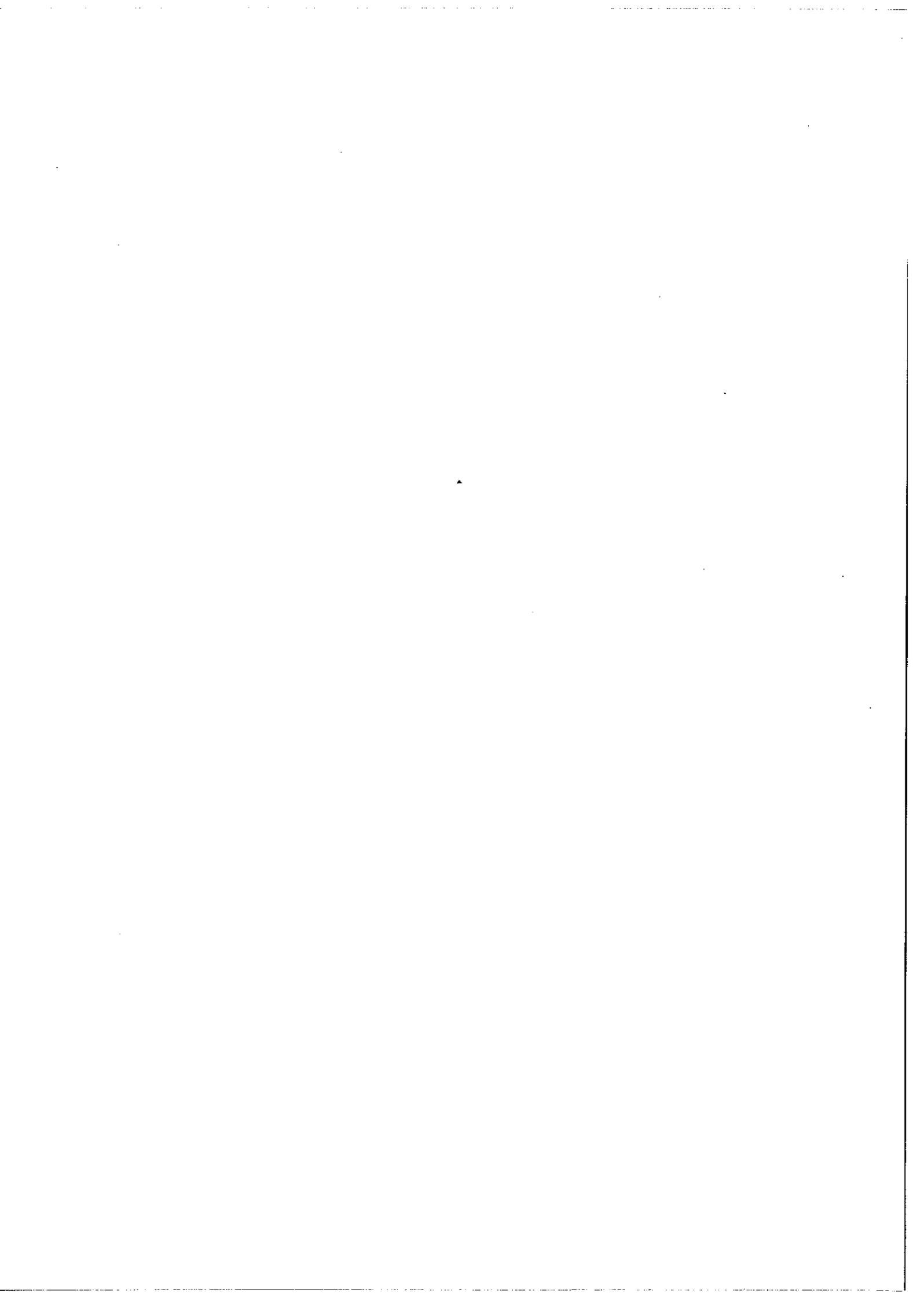


Figure 6

Ensemble mécanique du prisme sélecteur de raies laser.



cise comme celle effectuée sur les raies du magnésium ou d'autres études plus fines (déplacement isotopique par exemple) nécessite une détection synchrone adaptée à la nature des signaux (impulsions ou signaux continus).

On trouvera dans les annexes I et II les résultats portant sur quarante raies laser dont trente-sept n'avaient jamais été observées. Elles sont réparties dans le domaine spectral $1 \mu\text{m} - 6,5 \mu\text{m}$. Les résultats assez différents obtenus pour les trois alcalino-terreux étudiés s'expliquent en partie, comme nous allons le montrer, par la disposition relative différente des niveaux laser. On peut cependant noter un caractère commun à toutes ces raies : dans tous les cas l'oscillation laser est indépendante de la nature et de la pression du gaz porteur (néon, argon, hélium, hydrogène, etc...). Ce résultat n'est pas étonnant puisque pour cette classe de lasers, le gaz porteur n'intervient pas directement dans les processus d'excitation. Son rôle se borne à ralentir la migration des atomes de métal vers les zones froides et à permettre le passage de la décharge dans ces régions. Malgré cette caractéristique il a été utile de répéter chaque expérience avec plusieurs de ces gaz afin de reconnaître d'éventuelles raies laser de ces derniers.

2. COMPARAISON DES RESULTATS OBTENUS DANS LES ALCALINO-TERREUX.

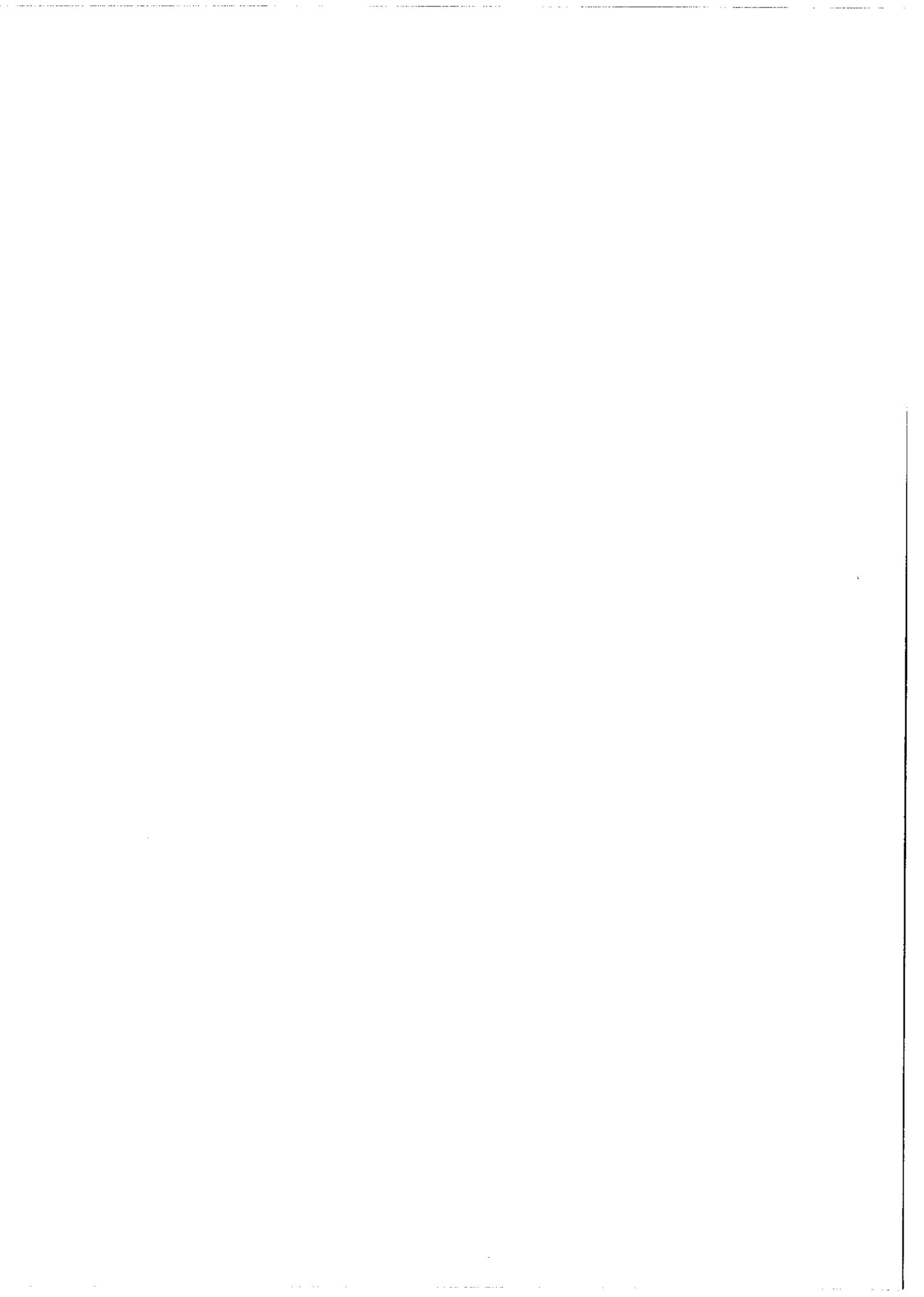
L'examen des diagrammes d'énergie pour les niveaux les plus profonds (spectres I et II) et des transitions donnant lieu à l'effet laser met en évidence un certain nombre d'analogies dans les résultats (figures 7, 8 et 9 - Energie des niveaux d'après [42, 43]).

Cas du baryum et du strontium.

- Spectres I (fig. 7).

On observe les deux raies homologues issues du premier niveau résonnant et aboutissant à un métastable : $6p(^1P_1) \rightarrow 5d(^1D_2)$ (Ba) et $5p(^1P_1) \rightarrow 4d(^1D_2)$ (Sr). Ces transitions sont typiques des lasers cycliques. Le cas du baryum est particulièrement favorable ; le taux d'excitation du niveau supérieur est assez fort pour permettre l'oscillation simultanée sur $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$ et $\lambda = 1,13 \mu\text{m}$. Sur la raie $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$ nous avons pu mesurer un gain de 4dB/cm à 650°C (voir 2ème partie Chap.I,B).

Les transitions du type $np(^3P) \leftrightarrow (n-1)d(^3D)$ apparaissent également. Dans le cas du baryum les transitions sont issues du 3P_2 qui a le poids statistique le plus élevé des 3P . On n'observe pas de transitions issues du 3P_1 bien qu'il soit connecté au fondamental par transition dipolaire électrique par suite du mélange $^1P_1, ^3P_1$. Le peuplement de ce niveau par collision électronique à partir du fondamental est donc peu efficace. Les triplets se peuplent surtout par des effets de cascade, processus très efficace puisqu'il permet l'oscillation simultanée des deux couples de raies $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$, $\lambda = 4,72 \mu\text{m}$ et $\lambda = 1,13 \mu\text{m}$, $\lambda = 2,32 \mu\text{m}$ chaque couple ayant même niveau inférieur. Le cas du strontium est différent. On y observe des raies laser issues des 3D situés cette fois au dessus des 3P . Le point intéressant est l'observation en émission continue de la raie $\lambda = 6,45 \mu\text{m}$ $5p(^1P_1) \rightarrow 4d(^1D_2)$. Ceci montre que le niveau inférieur 1D_2 n'est pas métastable. Par suite d'un couplage (L,S) imparfait il est connecté



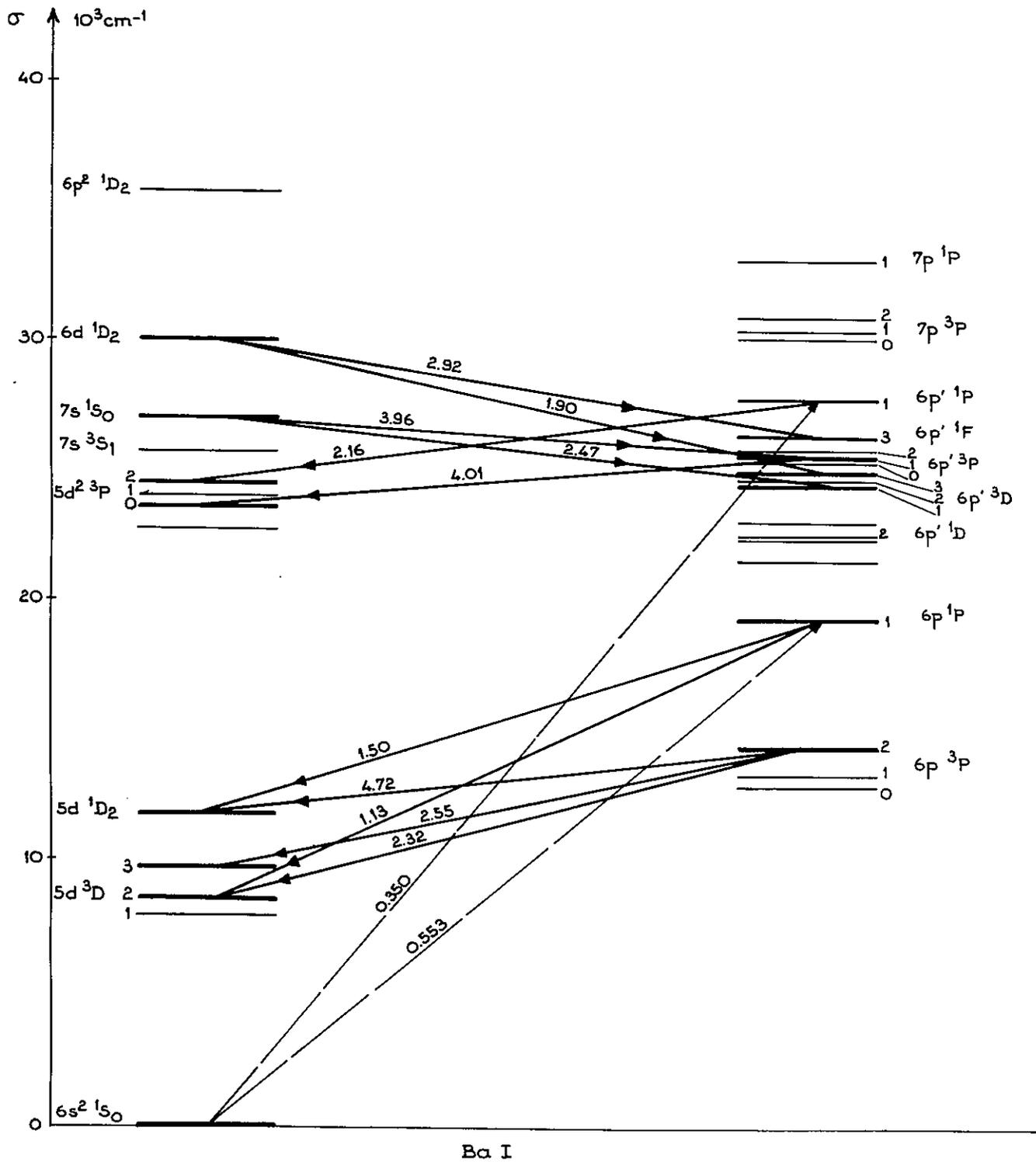
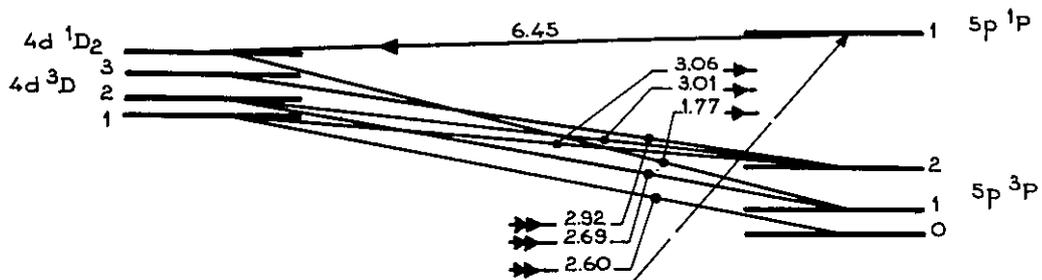
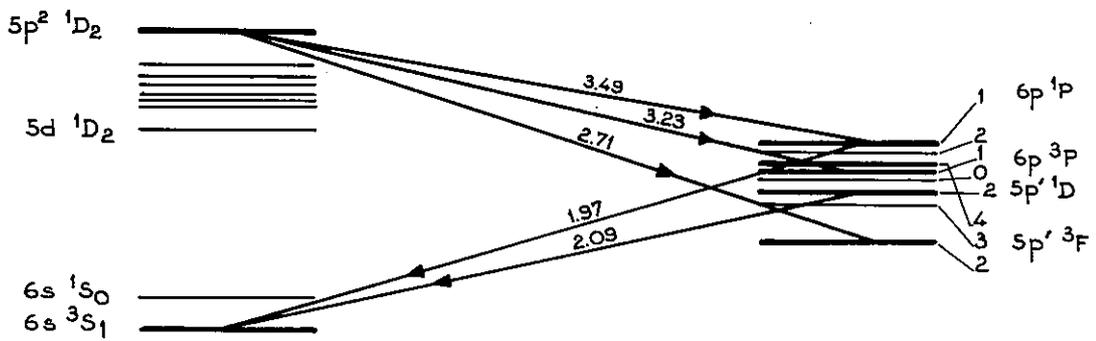


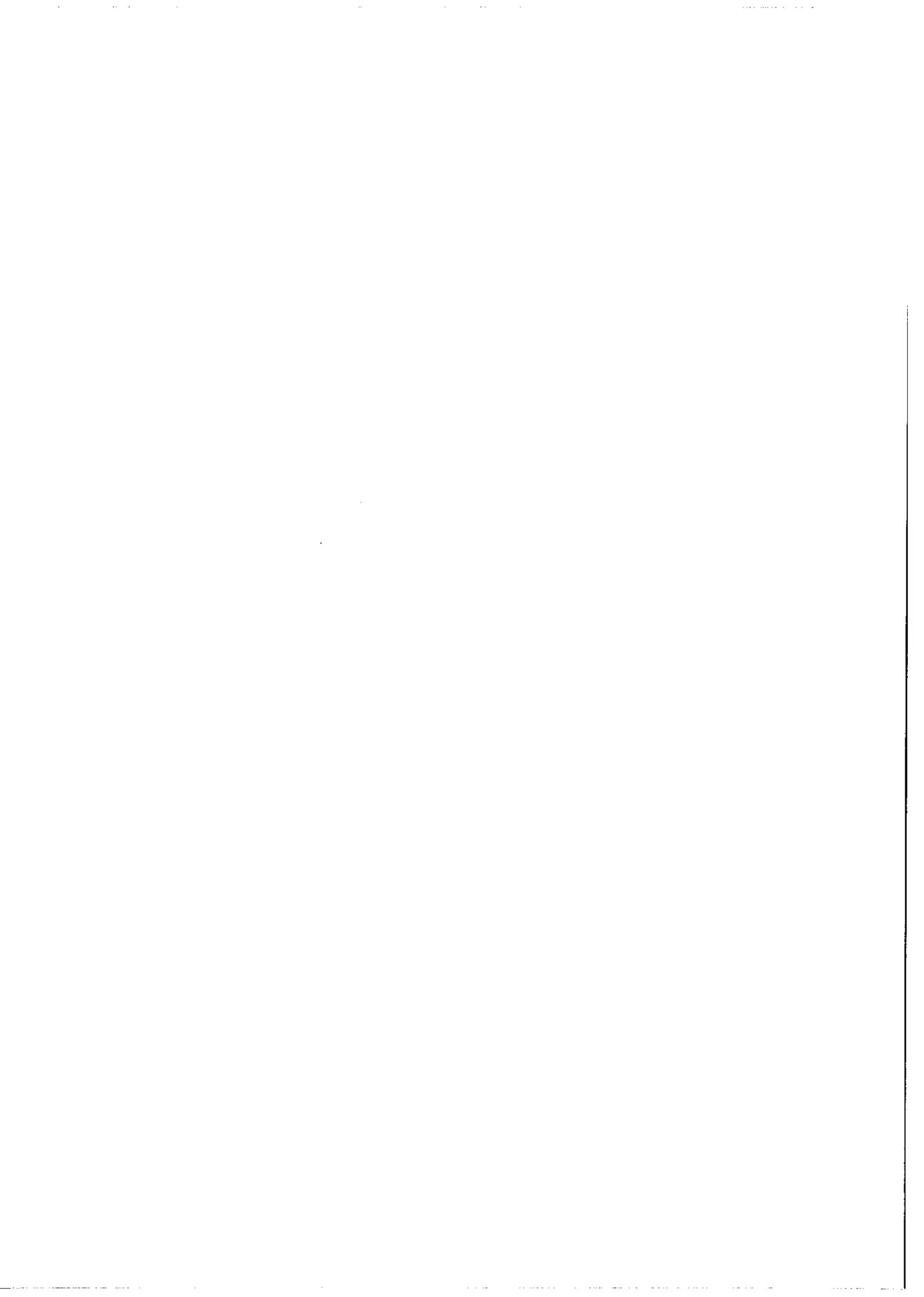
Figure 7

Raies laser obtenues dans le baryum et le strontium (spectres I)

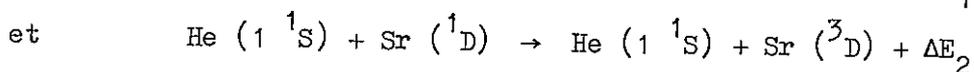
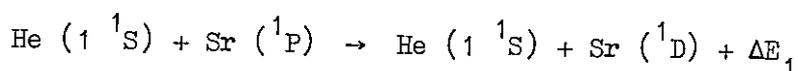


Sr I

Les raies laser observées par nous-mêmes sont repérées par \rightarrow celles observées par d'autres auteurs par \Rightarrow . Les raies en trait discontinu représentent des transitions d'émission spontanée. Toutes les longueurs d'ondes sont en μm .



par transition dipolaire électrique au niveau $5p\ ^3P_1$ (raie laser $\lambda = 1,77\ \mu\text{m}$) . Notons enfin que Sorokin et Lankard ont observé l'effet laser sur les trois transitions $\ ^3D_i \rightarrow \ ^3P_{i-1}$ dans des conditions très particulières [44] . Ces auteurs excitent un mélange de strontium et d'hélium sous forte pression (une atmosphère environ) par un laser à colorant en impulsions accordé sur la raie de résonance $\lambda = 4\ 607\ \text{\AA}$. Les collisions inélastiques du type



assurent le peuplement des $\ ^3D$.

Pour les niveaux plus élevés la comparaison des résultats est difficile par suite du nombre important de niveaux intéressés et de leurs positions relatives différentes dans le baryum et le strontium. On peut remarquer cependant que la transition du baryum $\lambda = 2,16\ \mu\text{m}$ $6p'(^1P_1) \rightarrow 5d^2(^3P_2)$ a un niveau supérieur assez fortement connecté au fondamental par transition dipolaire électrique ($\lambda = 3\ 501\ \text{\AA}$) . On peut aussi noter les effets de cascades pour les couples de raies $\lambda = 3,96\ \mu\text{m} - \lambda = 4,01\ \mu\text{m}$ (baryum) et $\lambda = 3,49\ \mu\text{m} - \lambda = 1,97\ \mu\text{m}$ (strontium) .

Enfin il est possible qu'une partie des raies non classées mettent en jeu les niveaux des configurations nd^2 dont les énergies ne sont pas encore déterminées. Le trop petit nombre de raies laser dans ce cas ne permet pas de tenter une détermination de ces niveaux.

- Spectre II .

Comme le montre la figure 8 les résultats sont beaucoup plus simples. Comme dans le cas du calcium [26] on s'attend à observer les couples de raies issues des premiers niveaux résonants et aboutissant aux métastables inférieurs (transitions $np(^2P) \rightarrow (n-1)d(^2D)$). Deech et Sanders les ont effectivement observé dans la vapeur de strontium [25]. Nous même n'avons obtenu dans cette vapeur que la raie issue du niveau $^2P_{3/2}$ correspondant à la raie de résonance la plus intense. Nous n'avons pas observé les transitions correspondantes dans la vapeur de baryum. Ce résultat peut s'expliquer par les probabilités de transition spontanées très élevées pour ces raies. On ne peut donc obtenir l'inversion de population qu'avec des impulsions de courant à front de montée particulièrement raide, condition remplie dans les expériences de Deech et Sanders mais probablement pas dans les nôtres. Néanmoins nous avons obtenu dans la vapeur de baryum l'effet laser sur le couple de raies homologues pour les niveaux immédiatement supérieurs $7p(^2P) \rightarrow 6d(^2D)$. Ces transitions correspondent à des raies de longueur d'onde plus élevées que celles des transitions $6p(^2P) \rightarrow 5d(^2D)$ (rapport quatre environ) ; les métastables se peuplent moins vite par émission spontanée.

Cas du magnésium (fig. 9).

- Spectre I

La disposition relative des niveaux est très différente de celles du baryum et du strontium. En particulier le premier niveau de réso-

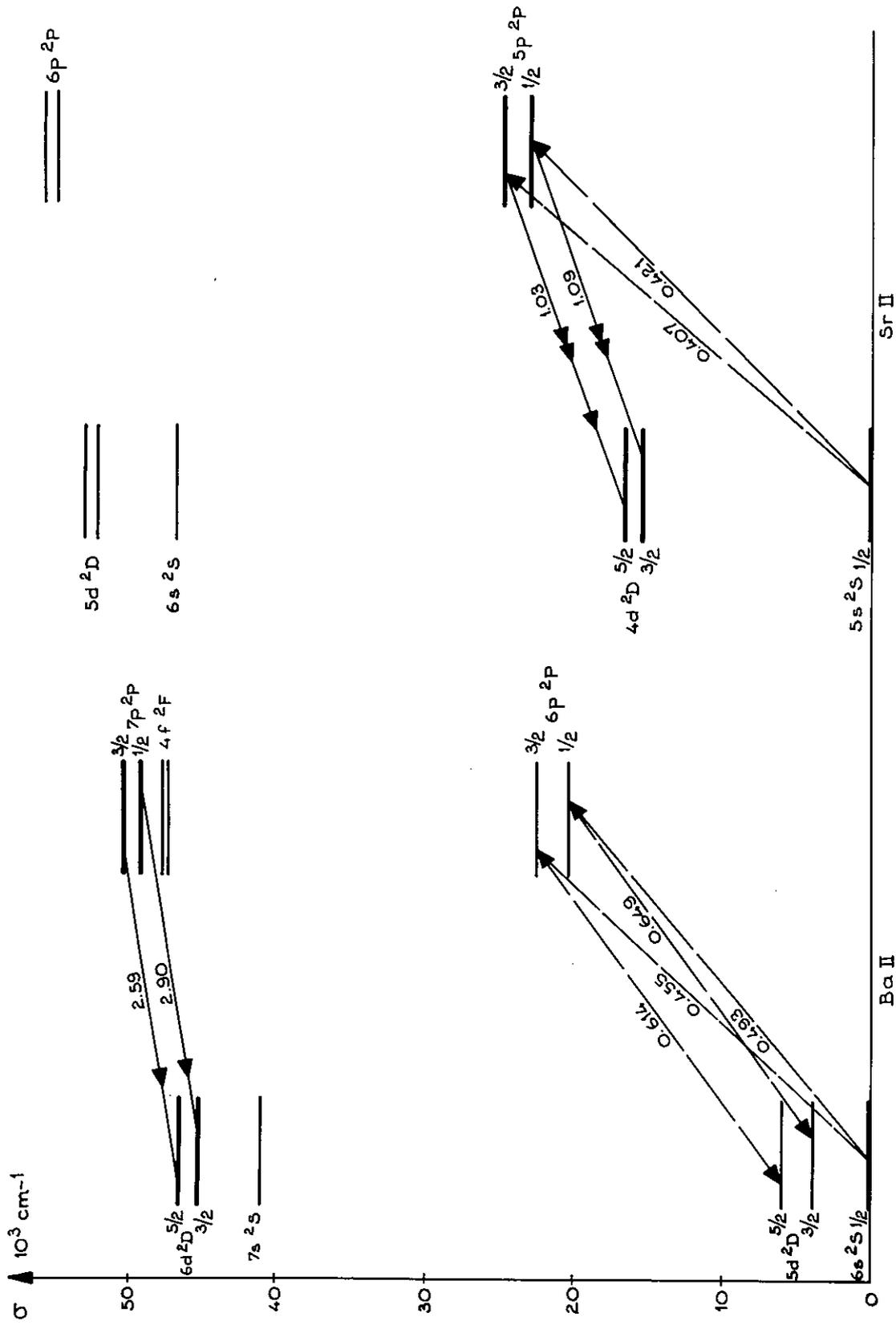
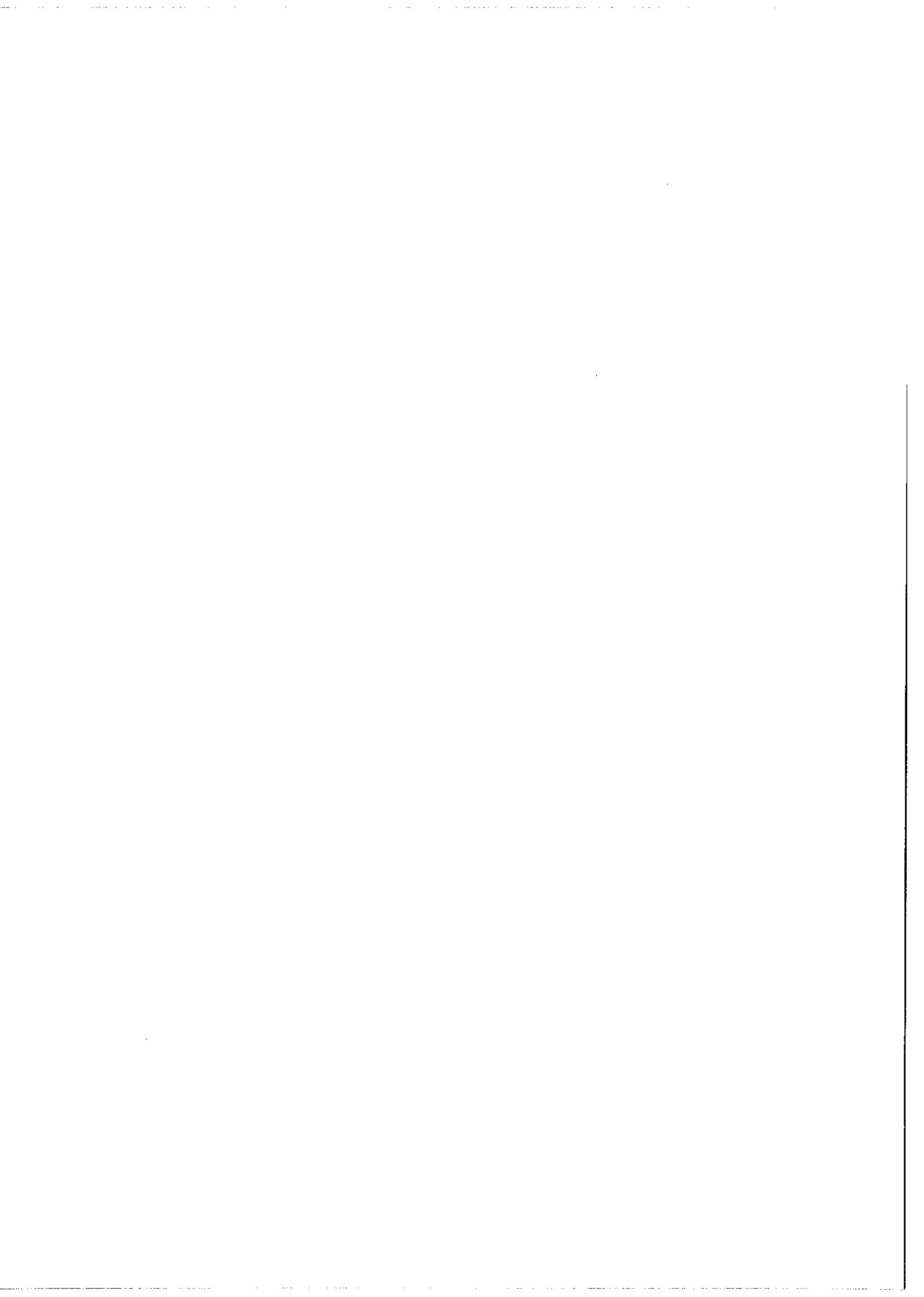


Figure 8

Raies laser obtenues dans les spectres II du baryum et du strontium (mêmes symboles que dans la figure 7).



nance ne peut émettre que la raie de résonance. On ne peut espérer obtenir des raies à gains élevés analogues à $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$ ou $\lambda = 6,45\mu\text{m}$. Effectivement nous n'avons observé aucune raie laser en impulsions pour le spectre de l'atome neutre. D'autres auteurs ont obtenu quelques raies en impulsions mais avec des tubes de grande longueur [45]. Les niveaux intéressés sont élevés et on ne peut dégager de propriétés intéressantes.

Par contre nous avons pu observer quelques raies en émission continue mais là encore il s'agit de niveaux élevés et l'on ne peut conclure. On peut seulement noter que les niveaux $5d(^3D)$ servent de niveaux supérieurs à la fois pour trois de nos raies oscillant en continu et pour une des raies obtenues en impulsions [45]. Le niveau $5s(^3S_1)$ est lui aussi commun à deux raies oscillant suivant des modes différents ($\lambda = 4,20 \mu\text{m}$ pour l'émission continue, $\lambda = 1,68 \mu\text{m}$ pour la raie en impulsions). De plus nous avons pu mettre en évidence le rôle de la raie $\lambda = 3,68 \mu\text{m}$ dans la cascade $5d(^3D) \rightarrow 5p(^3P_2) \rightarrow 5s(^3S_1)$; la raie $\lambda = 4,20 \mu\text{m}$ n'oscille qu'en présence de $\lambda = 4,68\mu\text{m}$.

- Spectre II

Comme pour le spectre I les premiers niveaux résonants ne peuvent émettre que les raies de résonance ; on ne peut observer de transitions laser issues de ces niveaux. Cependant comme dans le cas du baryum et du strontium nous avons pu obtenir l'oscillation laser pour des niveaux plus élevés correspondant aux transitions $5p(^2P) \rightarrow 4d(^2D)$. Hodges a obtenu l'effet laser en émission continue pour quatre des transitions possibles à partir des niveaux $4p(^2P)$ [46]. Dans ce dernier cas il

semble que l'ionisation Penning soit essentiellement responsable de l'inversion de population.

En conclusion cette étude a montré la possibilité d'obtenir des transitions laser à gain élevé en impulsions. Ceci nous a suggéré la possibilité de mettre au point un laser de courte longueur donc susceptible d'osciller en mode unique avec une intensité de crête assez élevée. Une telle source est en principe à fréquence accordable dans un domaine spectral d'étendue comparable à la largeur Doppler de la raie sur laquelle il oscille. Ce résultat intéressant, qui fait l'objet du paragraphe suivant, compense l'insuffisance du nombre de raies obtenues. Plus élevé il aurait pu aider à la classification des spectres ou permettre des études extensives de structures hyperfines ou de déplacements isotopiques comme par exemple dans le cas des gaz rares.

C) MISE AU POINT D'UN LASER MONOMODE ACCORDABLE EN FRÉQUENCE.

1. DESCRIPTION DU LASER SOURCE.

A l'époque où ont été effectués ces travaux on ne disposait pas de sources monochromatiques intenses accordables en fréquence dans un large domaine. Les seules sources à longueur d'onde variable et de grande finesse étaient alors les lasers oscillant sur un seul mode dominant. Pour ces sources la variation continue en fréquence est assurée par modification continue de la longueur de la cavité (déplacement longitudinal de l'un des miroirs par un procédé pneumatique ou piezo-électrique). Certains auteurs ont utilisé le balayage magnétique

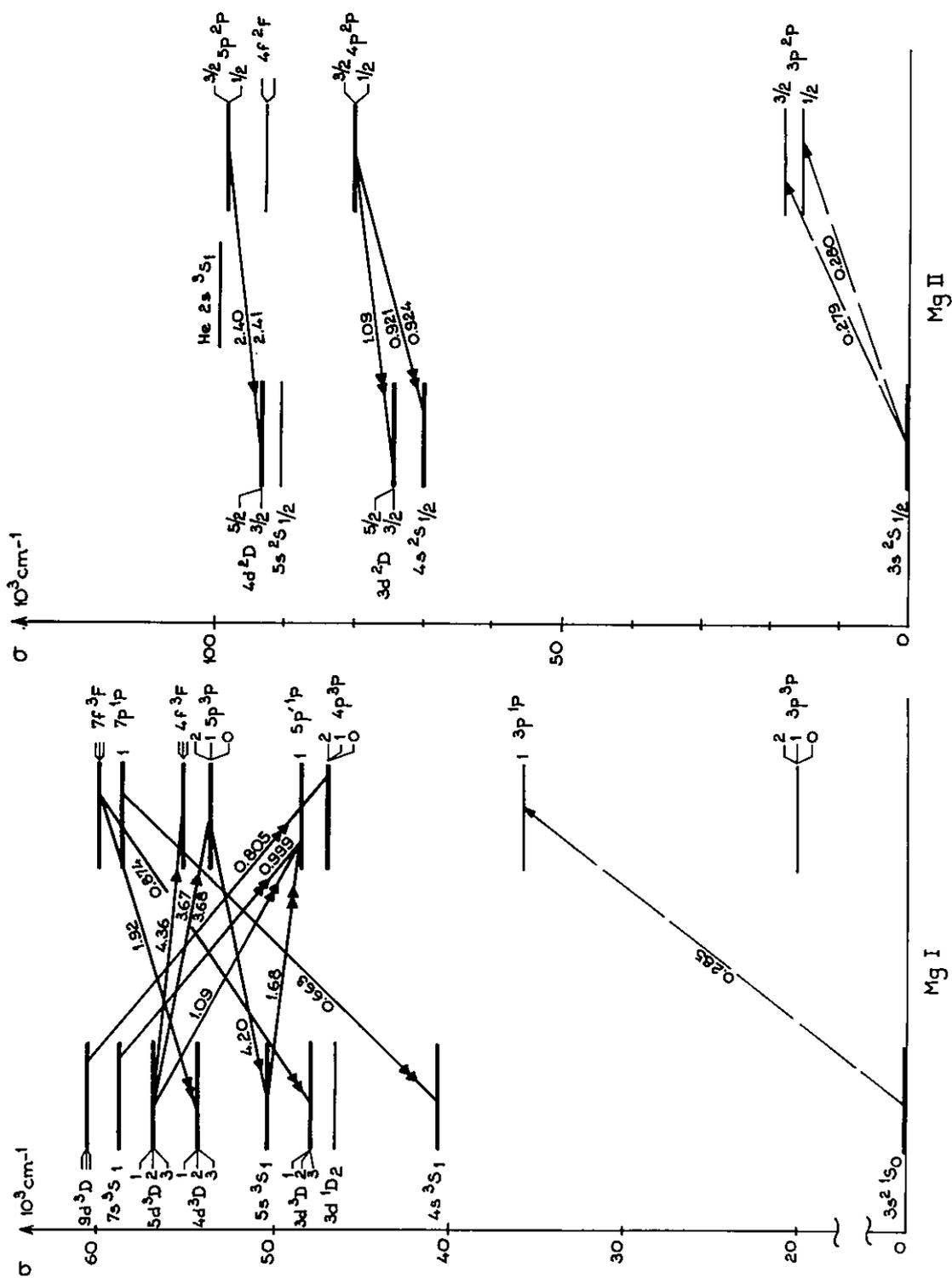
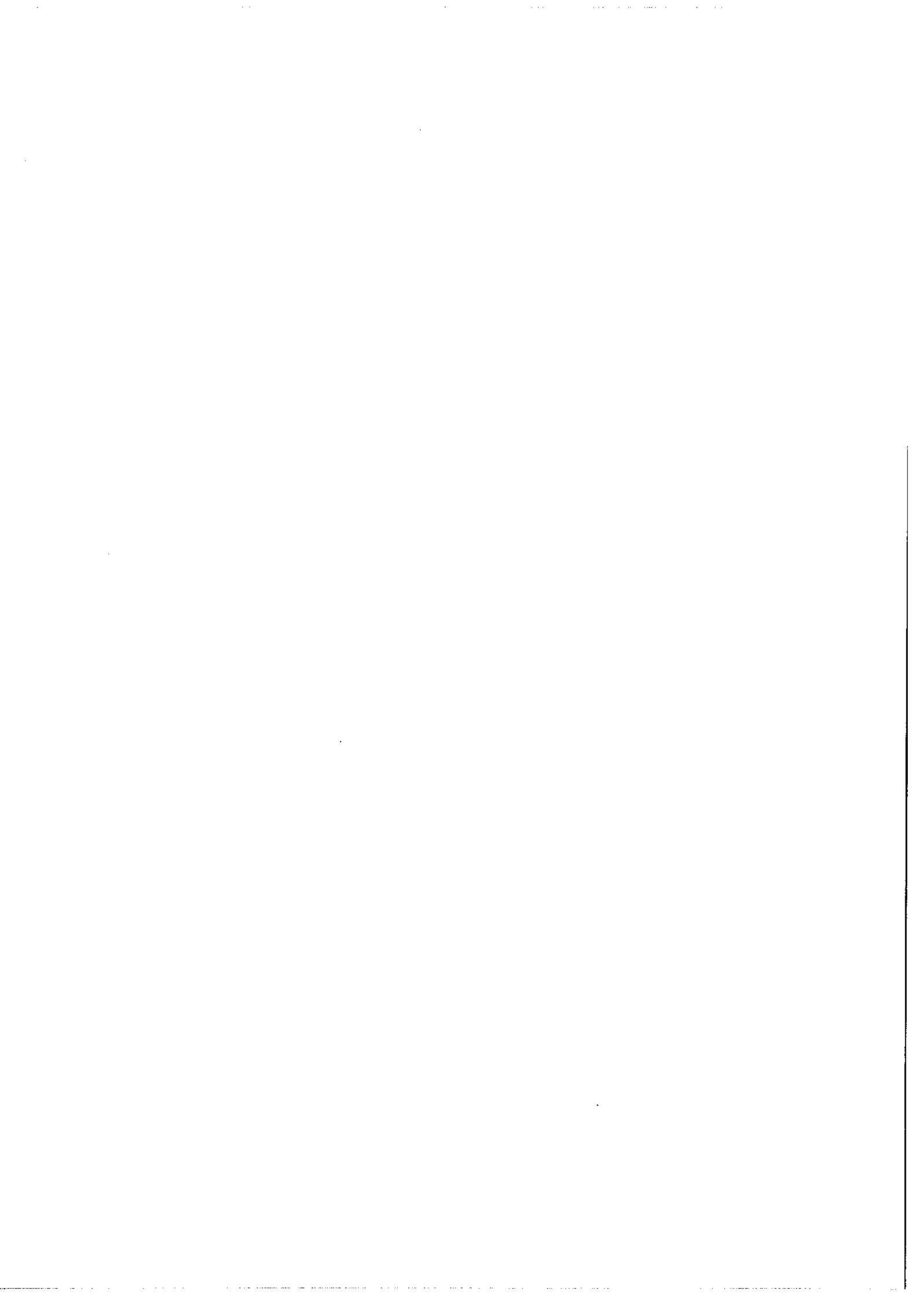


Figure 9

Raies laser obtenues dans le magnésium (spectres I et II)
(mêmes symboles que dans la figure 7).



(laser à effet Zeeman) mais ce procédé est d'emploi plus délicat ; il n'assure pas à lui seul un balayage continu [47]. Pour la suite de nos expériences j'ai cherché à mettre au point un laser accordable possédant les trois propriétés ci-dessous :

- monochromaticité : elle est déterminée pour un laser monomode par la largeur en fréquence du mode d'oscillation (cohérence de la source) augmentée des instabilités de la fréquence d'émission. La largeur totale maximum que l'on peut tolérer dépend évidemment de l'expérience envisagée ; une largeur maximum de quelques mégahertz est un bon ordre de grandeur pour des expériences à très haute résolution.

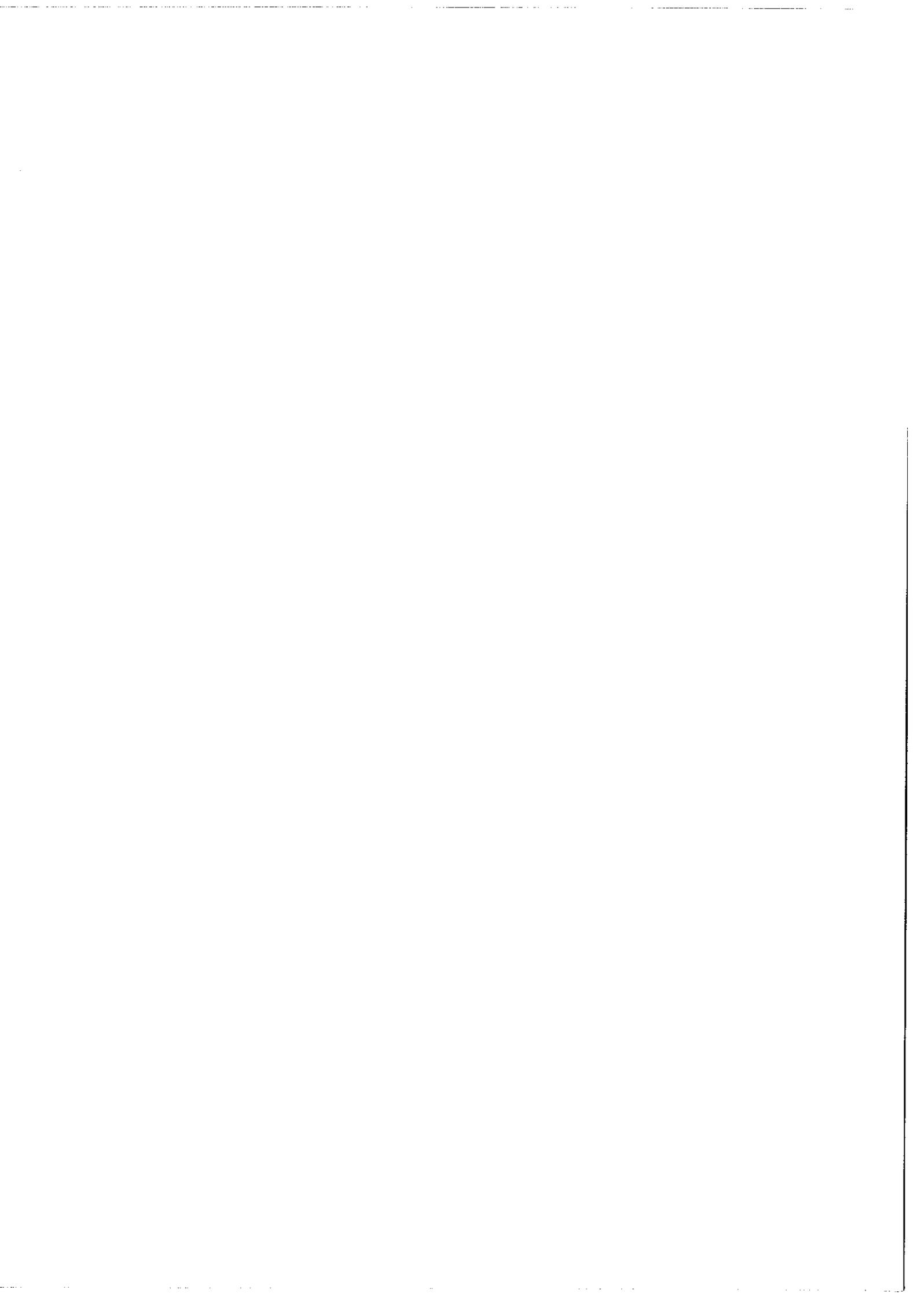
- variation continue de la fréquence d'oscillation : la plage d'oscillation en mode unique doit être aussi élevée que possible. En fait elle est fondamentalement limitée à une étendue de l'ordre de grandeur de la largeur Doppler. Dans le cas d'une transition à gain élevé le seuil de l'oscillation laser est bas ce qui est favorable à une plage d'oscillation plus importante. Un très faible effet Zeeman, ou des pressions élevées dans le tube à décharge sont également des facteurs favorables.

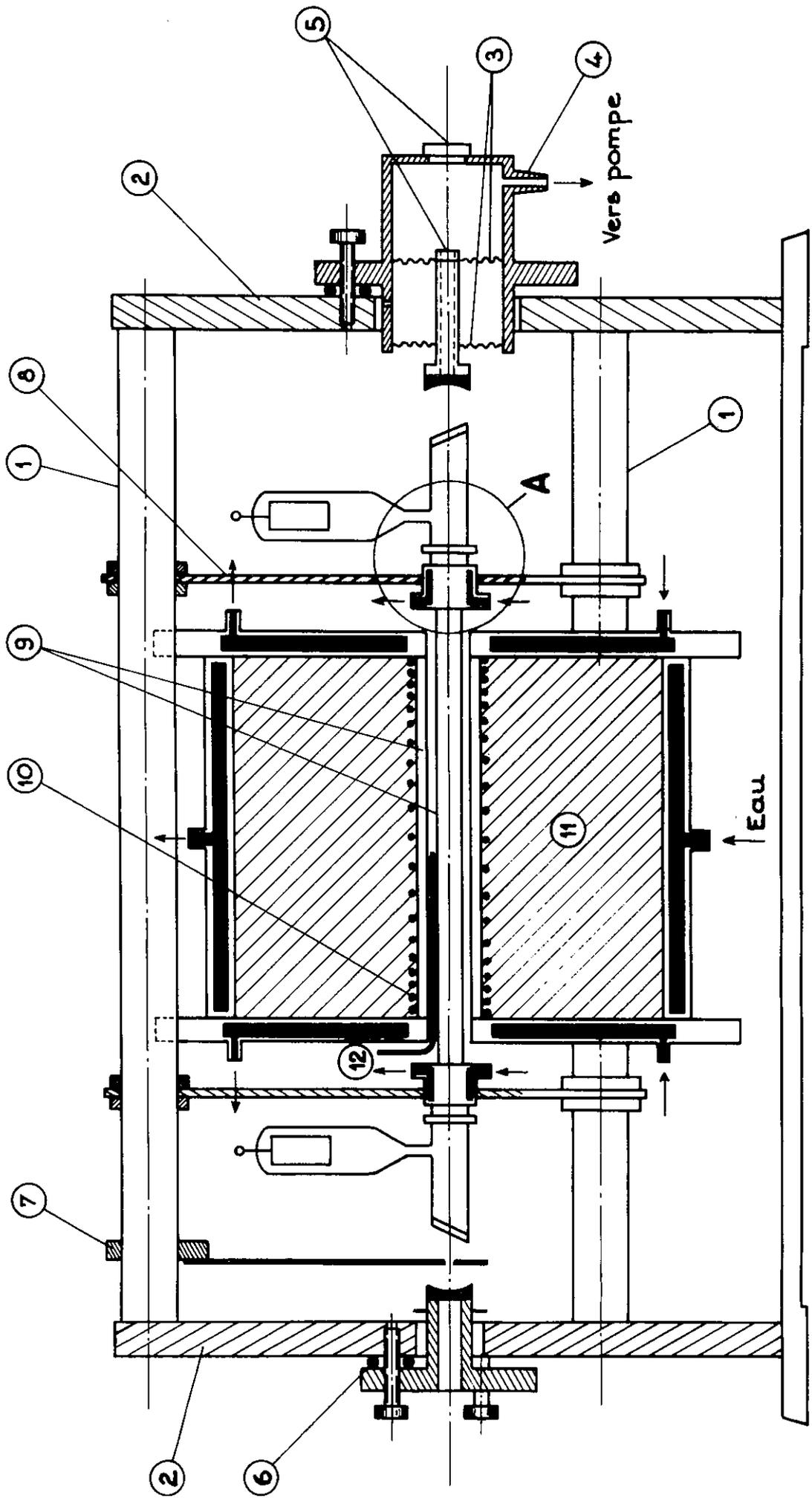
- intensité émise : dans des expériences d'absorption linéaire la puissance émise, même lorsqu'elle est considérée comme faible pour une émission laser, est en général très suffisante pour ne pas limiter le rapport signal/bruit. Il n'en est pas de même pour des expériences d'absorption non linéaire (absorption saturée). Le signal de saturation dont l'amplitude est fonction de l'intensité laser n'est détectable avec un bon rapport signal/bruit que pour des puissances sensiblement

supérieures. Dans ce domaine la stabilité en intensité de la source joue un rôle important.

Dans notre cas, la mise au point d'une telle source présente des difficultés particulières que l'on ne rencontre pas lorsqu'il s'agit de lasers à gaz classiques. Ces difficultés sont dues au fonctionnement en impulsions, à l'apport d'énergie thermique nécessaire à la vaporisation du métal et à la haute réactivité chimique des alcalino-terreux. Par contre, la valeur élevée des gains présentés par bon nombre des raies laser observées est un facteur favorable (plage spectrale balayée en mode unique importante). Des expériences préliminaires effectuées avec le baryum puis le strontium ont confirmé ces aspects du problème : avec des cavités laser de courte longueur nous avons facilement obtenu sans précaution particulière l'oscillation en mode unique sur plusieurs des raies mais dans des conditions de stabilité assez médiocres quant à l'intensité et la fréquence. J'ai ensuite entrepris la réalisation d'un montage plus élaboré. Pour sa mise au point nous avons choisi la raie la plus intense de celles observées dans la vapeur de baryum : $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$.

Les figures 10 et 11 montrent le laser réalisé. Pour le balayage en fréquence nous avons adopté un dispositif pneumatique analogue à celui utilisé par Vetter [4]. Il comprend une petite enceinte, préalablement vidée d'air, reliée à une fuite calibrée et fermée à l'une de ses extrémités par une membrane déformable. L'un des miroirs est solidaire de cette membrane et se déplace longitudinalement lorsque la pression varie dans l'enceinte. Avec ce procédé simple et de bonne





↑ zones refroidies à l'eau (→ sens de circulation)

- ① barres d'Invar
- ② portes miroir
- ③ } dispositif pneumatique de balayage
- ④ }
- ⑤ fenêtres
- ⑥ joints toriques
- ⑦ porte diaphragme
- ⑧ portes tube
- ⑨ tubes d'alumine
- ⑩ résistance chauffante
- ⑪ brique réfractaire
- ⑫ thermo-couple
- ⑬ joints de colle
- ⑭ pyrex
- ⑮ bagues de laiton

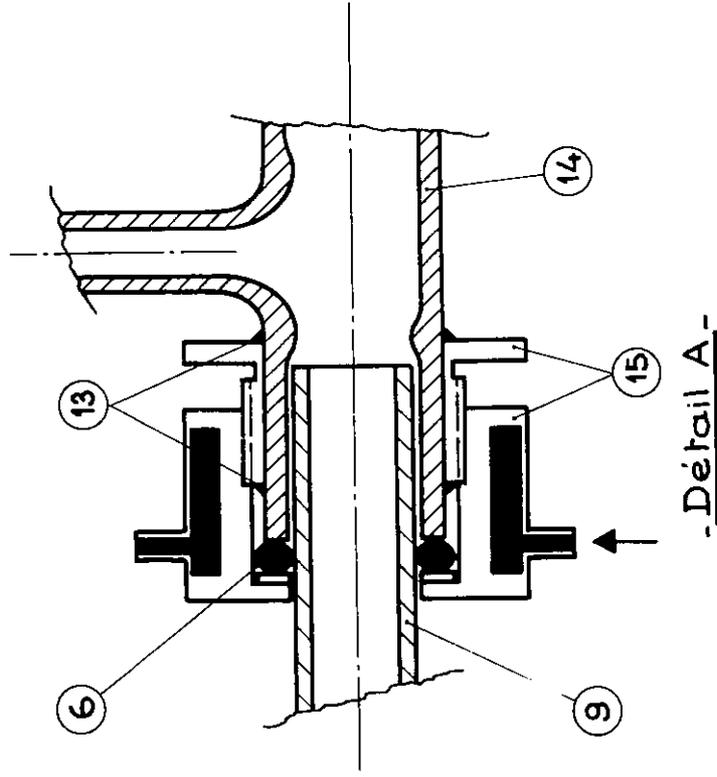
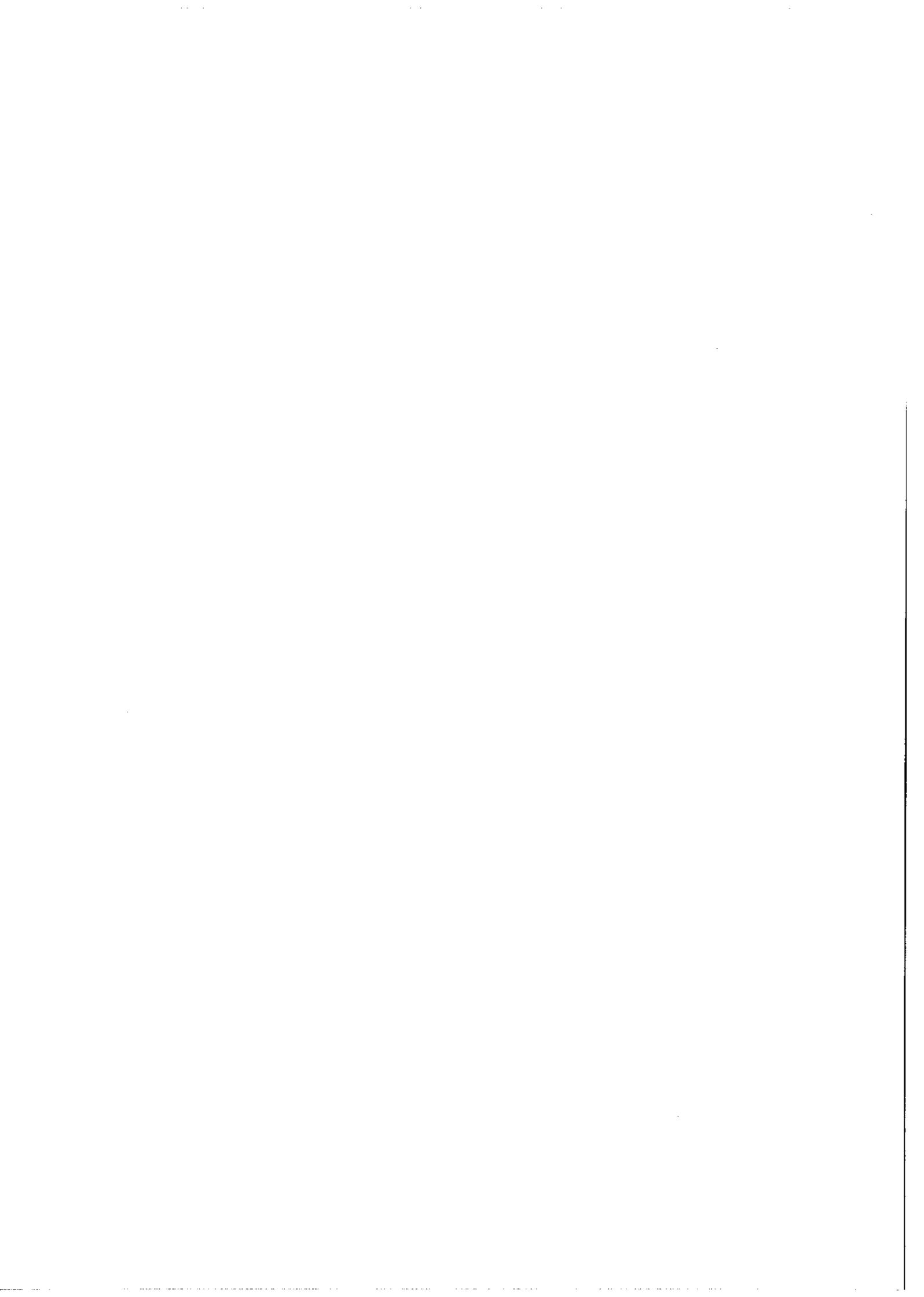


Figure 10

Laser monomode - coupe partielle.



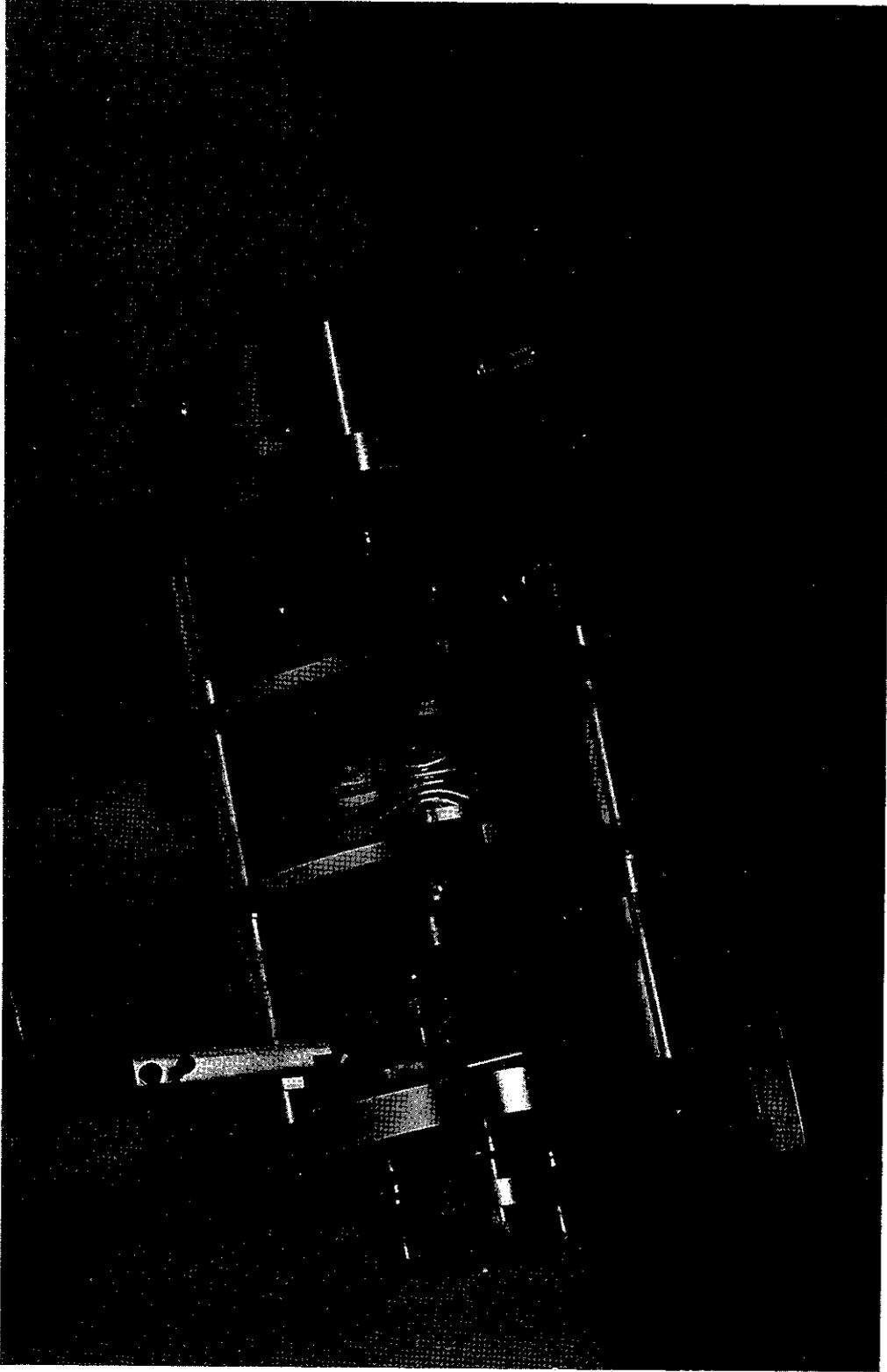
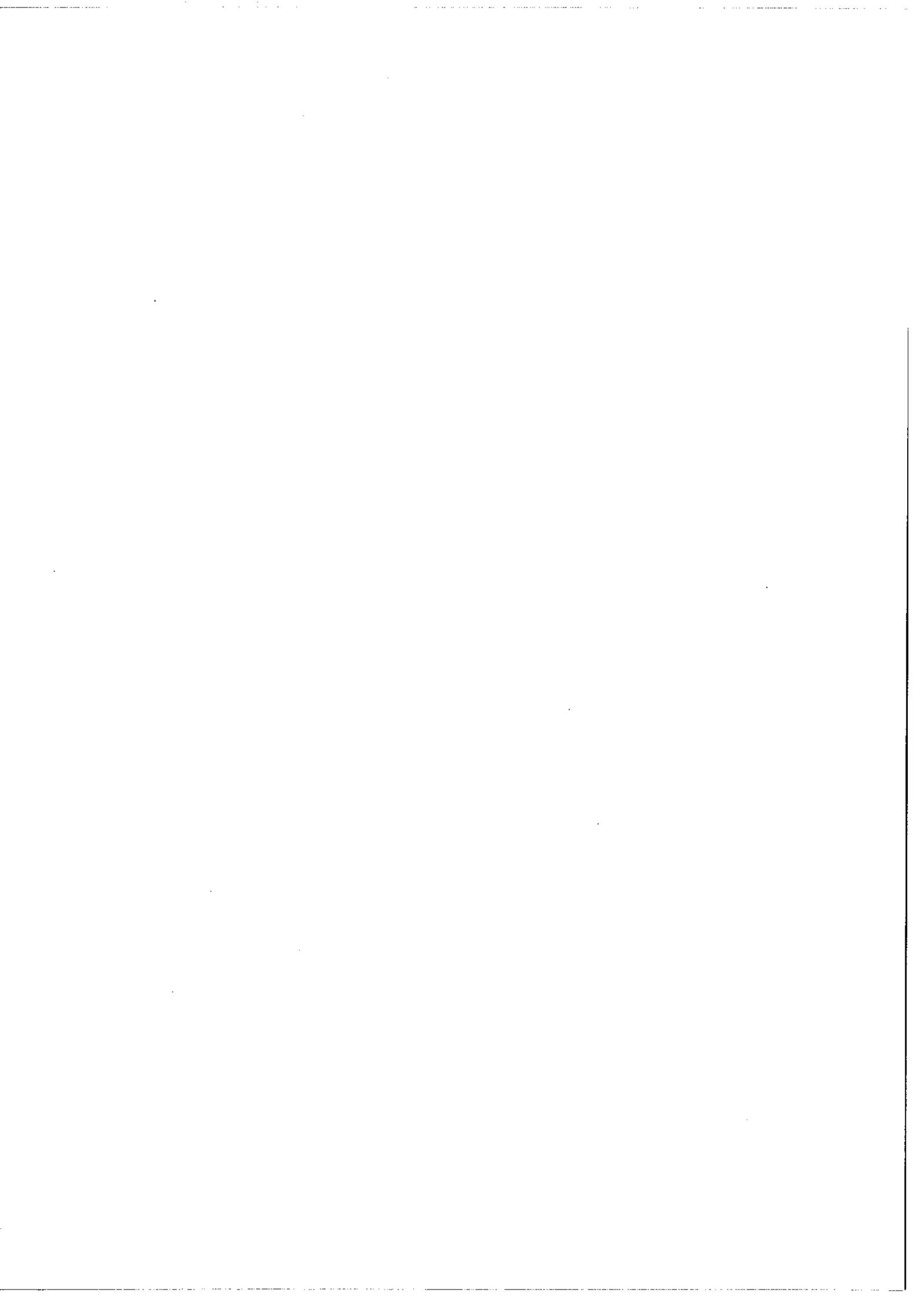


Figure 11

Laser monomode - Vue d'ensemble de la réalisation.



linéarité il est possible d'enregistrer un grand nombre d'ordres successifs. La stabilité thermique de la cavité est assurée par une montage en invar (trois barres à 120°) maintenant les supports des miroirs et le four électrique. Ce dernier est à doubles parois refroidies par circulation d'eau. Le tube à décharge est en trois parties et de conception analogue à celle des tubes plus longs utilisés auparavant. Les liaisons alumine-pyrex, elles aussi refroidies par circulation d'eau, ont été particulièrement étudiées afin de réduire leur encombrement. Le montage mécanique offre la possibilité d'user de trois longueurs de cavité: 17 cm, 22 cm et 39 cm ; il leur correspond trois fours de longueur 6 cm, 9 cm et 22 cm respectivement. Les intervalles entre ordres correspondants 29,4 mK, 22,7 mK et 12,8 mK sont à comparer à la largeur Doppler de la raie qui est de 12 mK environ à 650°C . Chacun des fours est à enroulement chauffant à spires progressivement resserrées vers les extrémités. On obtient ainsi une température bien homogène sur la majeure partie de la longueur du four. Un système régulateur de température permet de maintenir celle-ci à la valeur désirée avec des fluctuations inférieures à 5°C . Enfin notons que l'alimentation des fours est à courant continu. Lorsqu'on les alimente en courant alternatif le faible champ magnétique variable créé par l'enroulement produit des fluctuations dans l'intensité laser à la fréquence double de celle du secteur.

L'énergie lumineuse est extraite à travers le miroir fixe. Ce procédé permet de concentrer sur un seul faisceau toute l'énergie extraite. Il nous a paru plus intéressant que le système à lame à faces parallèles, surtout utile lorsqu'on désire disposer de quatre

faisceaux d'intensités voisines et de toute façon mal adapté à un prélèvement d'énergie important (l'angle élevé de la lame conduirait à un encombrement prohibitif dans notre cas). Nous avons utilisé des miroirs de sortie à coefficients de réflexion compris entre 70% et 90% selon les cas (miroirs à couches multidiélectriques). Le gain élevé sur $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$ autoriserait l'emploi de pouvoirs réflecteurs encore plus faibles mais le faisceau de sortie serait alors insuffisamment bien défini en fréquence. L'autre miroir est à coefficient de réflexion maximum (supérieur à 99%).

L'excitation électrique du tube (figure 12) est analogue dans son principe à celle utilisée dans les expériences précédentes. Le montage des différentes parties du circuit a été étudié de façon à rendre minimum les effets d'auto-induction. Ces effets tendent à diminuer la raideur du front de montée de l'impulsion électrique. Dans ce but nous avons réduit autant que possible la longueur totale du circuit de décharge (les éléments C et R_d sont au contact de l'ancle). Un câble coaxial relie des deux parties principales du montage. Une très bonne masse est également nécessaire.

La figure 13a montre un enregistrement du profil de l'émission laser en fonction de la fréquence pour la cavité de 22 cm. On y remarque le "lamb-dip" dont la dissymétrie s'explique par la présence de plusieurs isotopes dans le baryum naturel utilisé ici. L'effet Zeeman dû au champ magnétique de l'enroulement chauffant intervient aussi. La largeur à mi-hauteur du profil est ici un peu inférieure à une fois et demie la largeur Doppler. Un examen à l'oscilloscope des impulsions

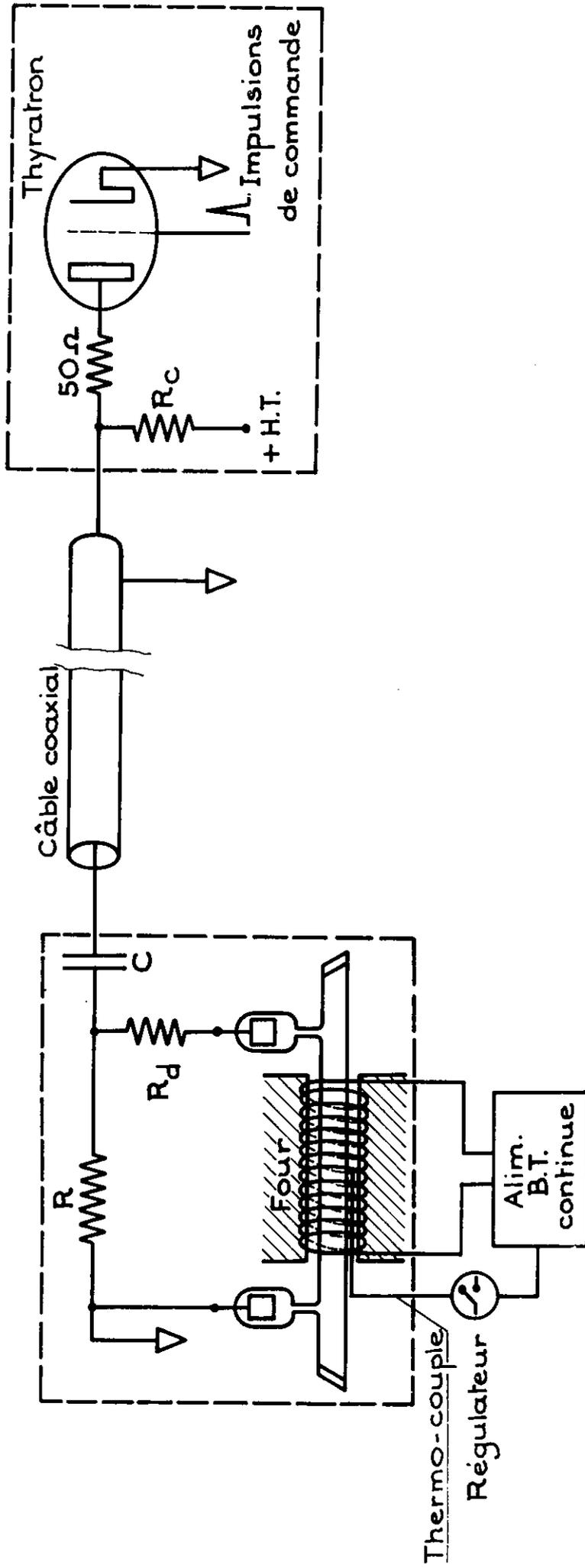
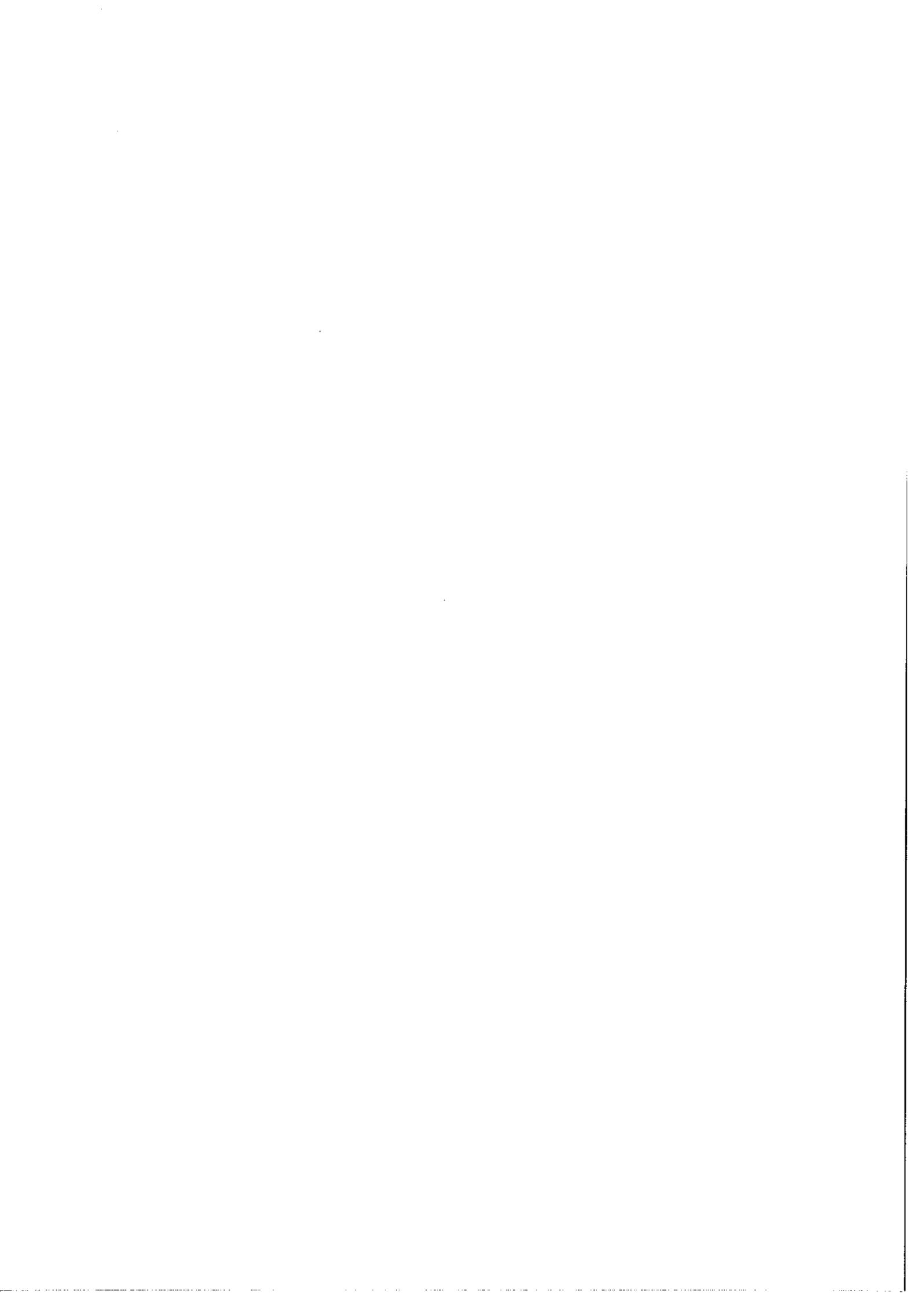


Figure 12

Laser monomode - Excitation électrique - Les éléments C (2000 pF) et R_d (15Ω) sont très proches de l'électrode. Les résistances R et R_C sont élevées (de l'ordre de 100 K Ω). La haute tension est généralement de l'ordre de 2 KV .



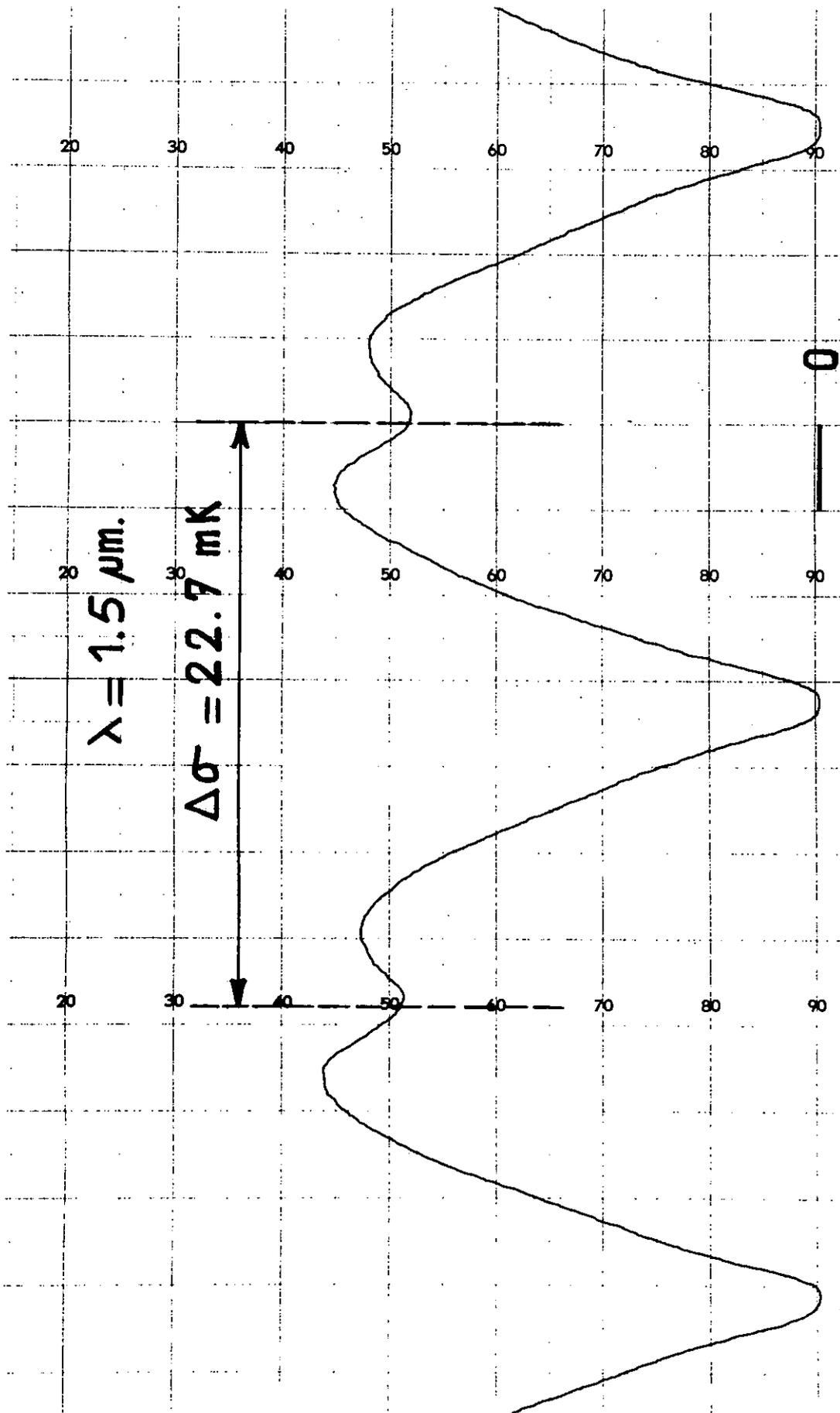
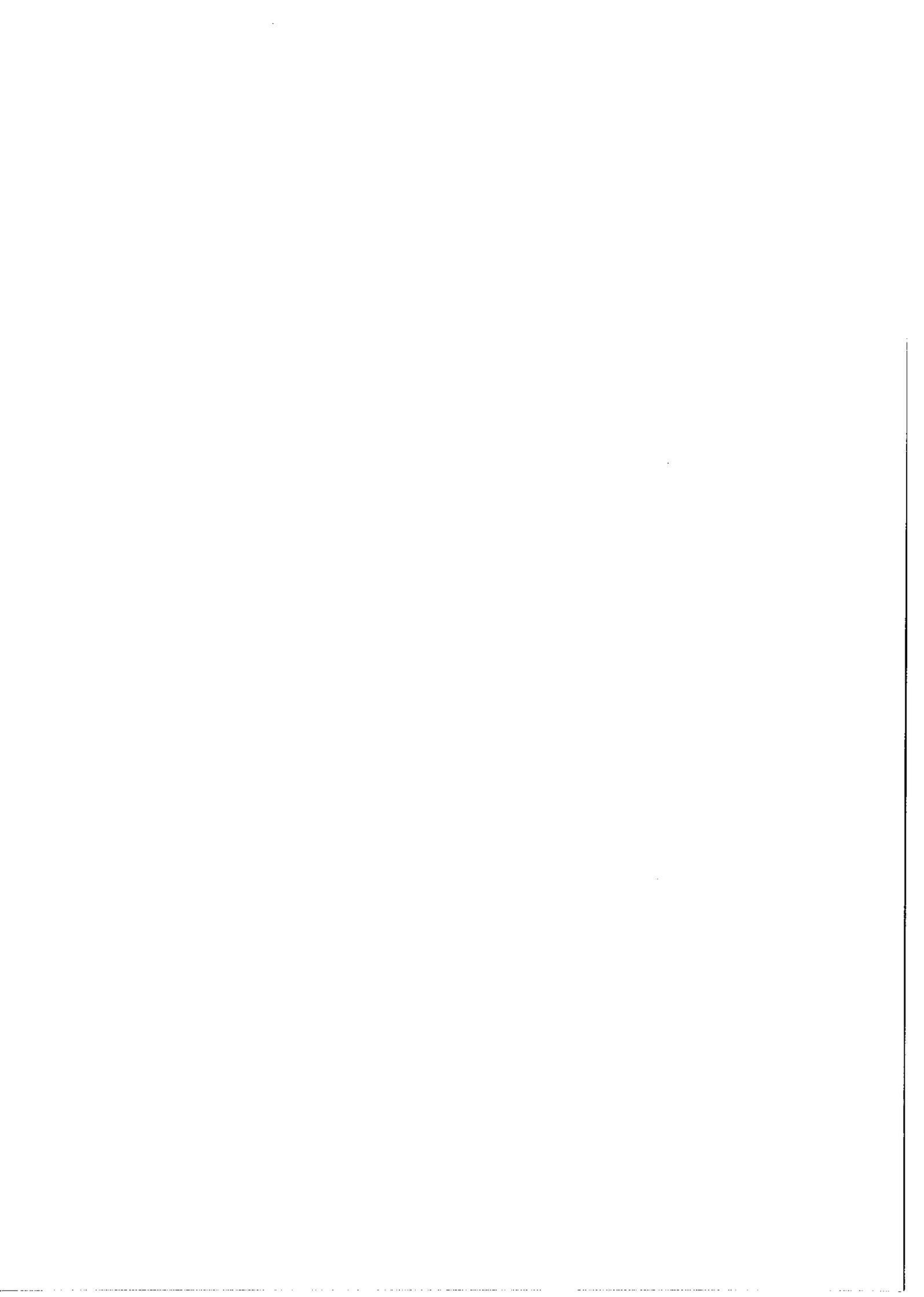


Figure 13a

Enregistrement du profil de la raie laser du baryum I à $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$



laser successives montre que leurs fluctuations d'intensité (en un point fixe du profil) sont inférieures à 5% sauf pour quelques points isolés (figure 13b). Pour connaître le domaine spectral sur lequel l'oscillation a lieu sur un seul mode dominant nous avons analysé le faisceau de sortie à l'aide d'un étalon de Fabry-Perot plan de 10 cm d'épaisseur balayé par pression (intervalle entre ordres 50 mK). On évite un couplage entre les deux cavités optiques grâce à une lame quart-d'onde intermédiaire. La figure 14 montre un exemple d'enregistrement obtenu en balayant simultanément l'interféromètre et le laser. Au cours du balayage, la fréquence de la raie laser augmente (diminution de la longueur de la cavité) tandis que celle des pics de transmission du Fabry-Perot diminue (augmentation de l'indice donc de l'épaisseur optique). On obtient ainsi dans un même profil laser un grand nombre d'ordres de l'interféromètre. On reproduit point par point le profil d'émission ; le nombre de points dépend de la vitesse relative des balayages. Les enregistrements montrent que lorsque l'intensité laser passe par zéro entre deux ordres successifs de la cavité l'oscillation est presque partout monomode. Il n'en est plus de même si on augmente le gain du laser : il apparaît rapidement une petite zone où coexistent deux modes dominants. Afin de diminuer la largeur relative de cette zone nous avons expérimenté l'effet d'un Fabry-Perot plan solide placé dans la cavité laser. Son épaisseur était de 15 mm. Chacune de ses faces avait un pouvoir réflecteur de 70% environ. Une petite amélioration a ainsi été apportée mais au prix d'une augmentation de la longueur de la cavité et au total on n'accroît pas la largeur absolue de la plage balayée en mode unique. Ce système a été abandonné.

- Remarque : sur la figure 14 on peut voir que le profil des ordres successifs du Fabry-Perot est dissymétrique. Ceci traduit un réglage médiocre de l'interféromètre. A cause de sa grande épaisseur et aussi du faible pouvoir réflecteur des lames pour la longueur d'onde du laser d'alignement ($\lambda = 6\ 328$) un excellent réglage, qui du reste n'est pas ici nécessaire, est difficile à obtenir. En fait un Fabry-Perot sphérique à balayage piezoelectrique (analyseur de modes) aurait été préférable mais nous avons renoncé à son emploi à cause du fonctionnement en impulsions du laser suivant une fréquence de répétition maximum trop faible pour cette étude.

2. CALIBRAGE DE LA FREQUENCE EMISE PAR LE LASER.

La source telle que nous venons de la décrire ne saurait, utilisée seule, conduire à une étude quantitative des phénomènes. En effet, il est maintenant bien connu (en particulier par les travaux de Bennett et de Lamb [48,49]) que la fréquence d'émission ν_n d'un laser oscillant sur le mode dominant $\{n,0,0\}$ diffère de celle de la cavité passive pour le même mode, Ω_n , lorsque Ω_n ne coïncide pas avec la fréquence ω de la transition laser. L'écart $\nu_n - \Omega_n$ dépend de nombreux facteurs et en particulier de l'intensité avec laquelle se produit l'oscillation. Lamb a montré, dans un calcul au troisième ordre [49], que pour un laser oscillant sur le seul mode dominant $\{n,0,0\}$ on a approximativement :

$$\nu_n - \omega = \Omega_n - \omega + \sigma_n + \rho_n E_n^2$$

σ_n et ρ_n sont des fonctions compliquées de $\Omega_n - \omega$ qui dépendent

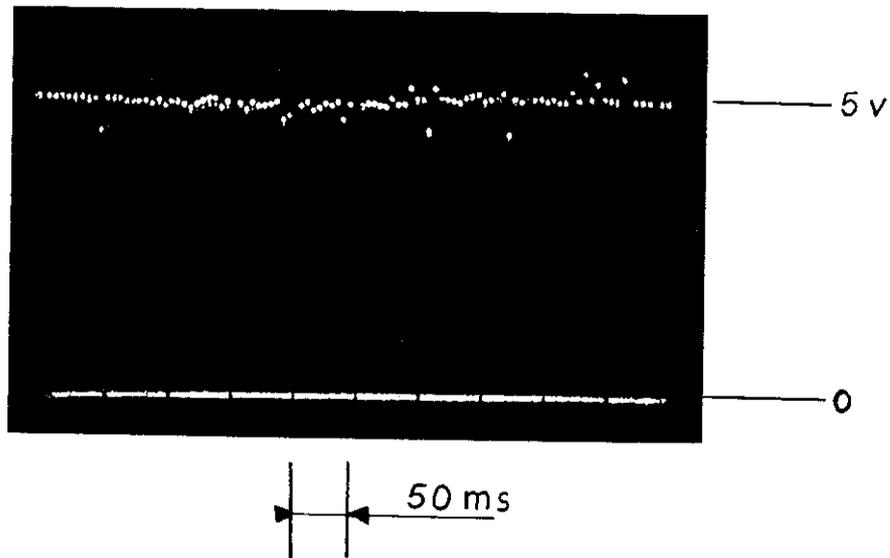
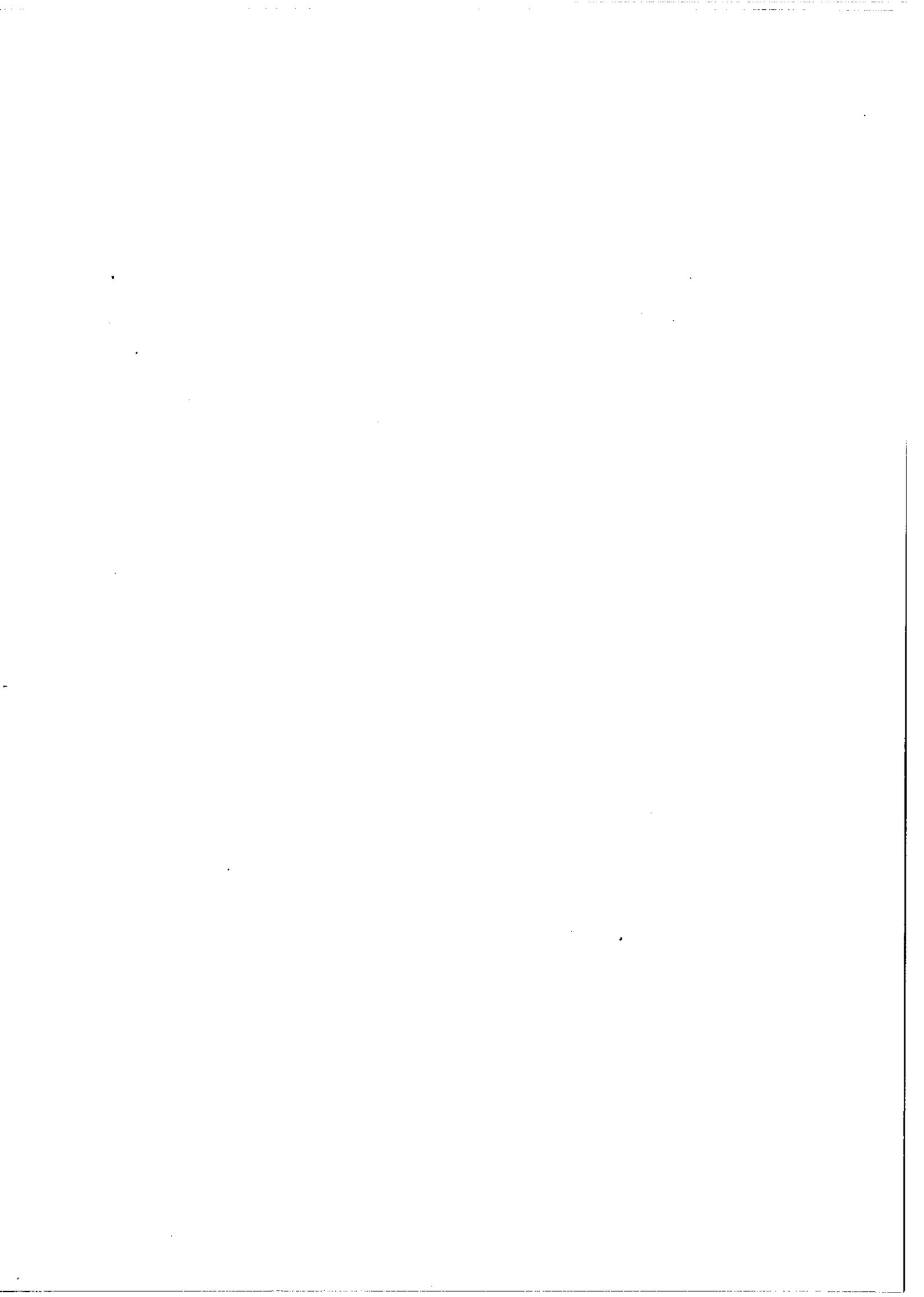


Figure 13b

Stabilité en intensité du laser - La fréquence du mode est fixée (approximativement au centre du profil). Chaque point correspond à la valeur crête de l'impulsion en sortie du préamplificateur de cellule (fig. 28).



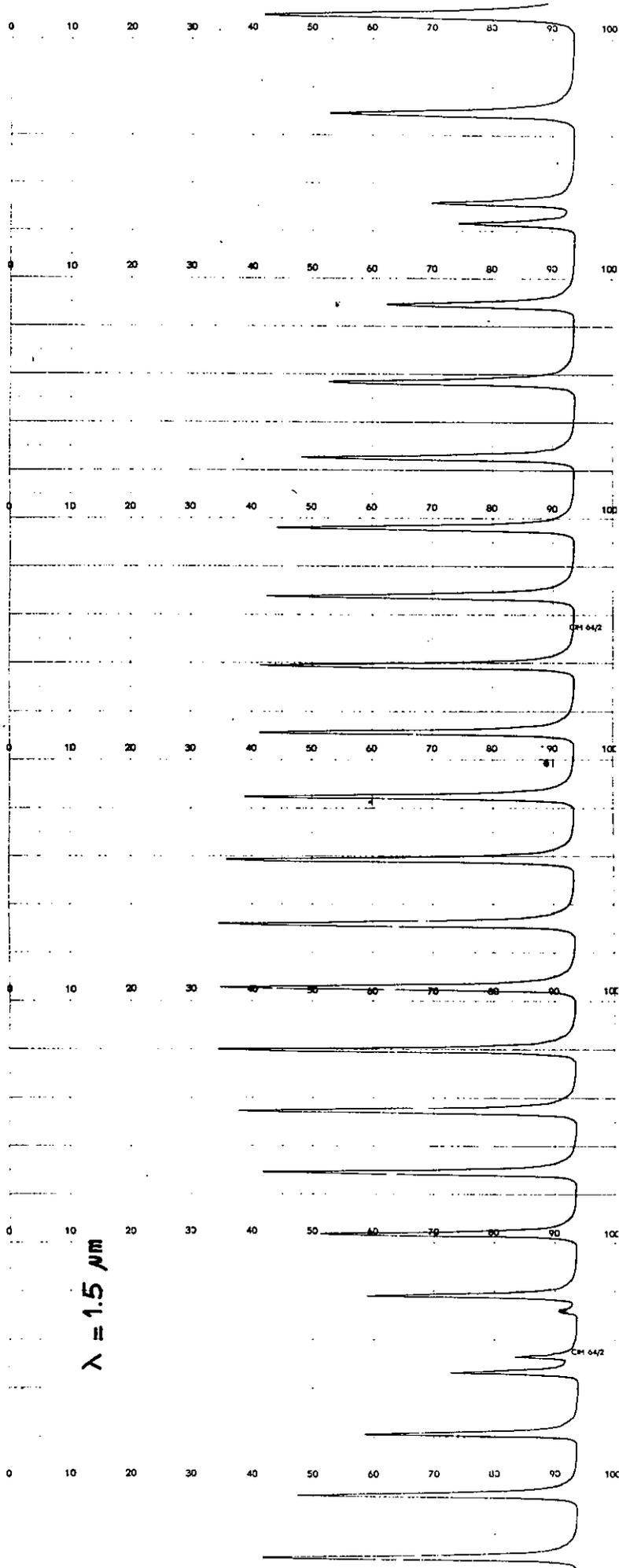
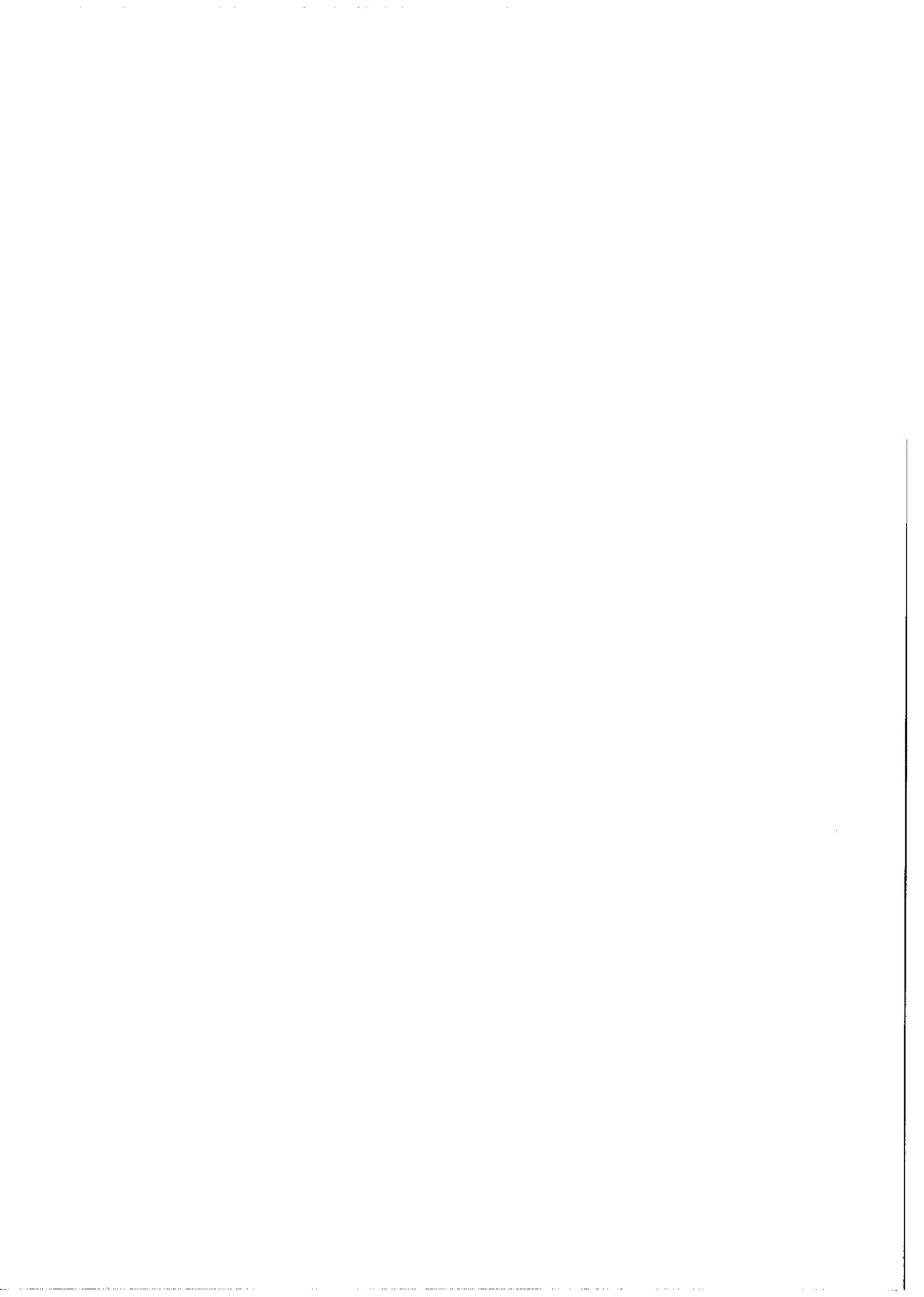


Figure 14

Plage spectrale balayée par le laser sur un seul mode dominant.
 Dans la région du minimum d'intensité coexistent deux modes longitudinaux (épaisseur du Fabry-Perot extérieur explorateur : 10cm).



aussi de l'excitation relative $\frac{\bar{N}}{\bar{N}_T}$ (\bar{N} est l'excitation moyenne du milieu laser, paramètre lié à la densité d'atomes actifs en l'absence d'oscillation, \bar{N}_T est sa valeur au seuil de l'oscillation). E_n^2 qui caractérise l'intensité de l'oscillation sur le mode $\{n,0,0\}$ est une fonction de $\nu_n - \omega$ et de $\frac{\bar{N}}{\bar{N}_T}$. Il n'y a donc pas de relation simple entre ν_n et Ω_n . L'effet peut être important (notamment dans le cas de pertes élevées dans la cavité). Le plus souvent les signes de σ_n et ρ_n conduisent à une dilatation apparente de l'échelle des fréquences : $|\nu_n - \omega| < |\Omega_n - \omega|$.

Des mesures précises de position exigent donc un étalonnage en fréquence de l'émission laser. Un procédé simple consiste à utiliser un étalon de Fabry-Perot plan. En pratique cette solution est difficilement applicable : étant donné le petit intervalle spectral balayé par le laser, si l'on admet un espacement des franges de référence plus faible d'au moins un ordre de grandeur, on est conduit pour l'épaisseur optique de l'interféromètre à une valeur prohibitive (de l'ordre de plusieurs mètres). Une solution plus élaborée a été utilisée par Vetter [4]. L'étalonnage est effectué à l'aide d'un Fabry-Perot sphérique en configuration confocale de 90 cm d'épaisseur dont le balayage est effectué par variation de pression. Comme nous l'avons vu, dans l'analyse des modes du laser, lorsqu'on balaye simultanément le laser et l'interféromètre on "resserre" artificiellement l'interfrange. L'inconvénient de ce procédé est qu'il nécessite un étalonnage de la vitesse de balayage à chaque mesure. De plus la variation de pression dans l'enceinte de l'interféromètre doit être bien linéaire. C'est pourquoi nous avons préféré la solution utilisant un étalon de Fabry-

Perot sphérique multipassages (F P S M P) dont nous rappelons ici quelques propriétés.

On peut montrer par un calcul assez simple [50,51] que pour un couple de miroirs sphériques de rayon de courbure donné R , il existe des distances D entre ces deux miroirs telles que après N allers et retours la figure des spots (traces des réflexions successives sur les miroirs) se referme exactement. Le $2N$ ième spot coïncide exactement avec le premier. Le grandissement du système est égal à l'unité. Le Fabry-Perot sphérique confocal correspond au cas particulier $N=2$.

Dans le cas général de deux miroirs sphériques distants de D on montre [50] que les coordonnées du p ième spot sont pour D quelconque (satisfaisant seulement à la condition de stabilité $D < 2R$) :

$$(1) \quad \begin{cases} x_p = A \sin(p \theta + \alpha) \\ y_p = B \sin(p \theta + \beta) \end{cases} \quad (\text{voir figure 15a})$$

où θ est donné par

$$(2) \quad \cos \theta = 1 - \frac{D}{R}$$

Les constantes A , B , α et β dépendent de D , R et des conditions d'entrée dans le Fabry-Perot. D'une façon générale les spots se répartissent donc suivant une ellipse. Pour des conditions d'entrée bien particulières la répartition a lieu sur un cercle et la condition pour que le spot d'entrée et son image après $2N-1$ réflexions coïncident (système fermé) est

$$(3) \quad 2N\theta = 2k\pi \quad (k \text{ entier distinct de } N)$$

2θ représente alors l'angle polaire entre deux spots successifs sur un miroir donné.

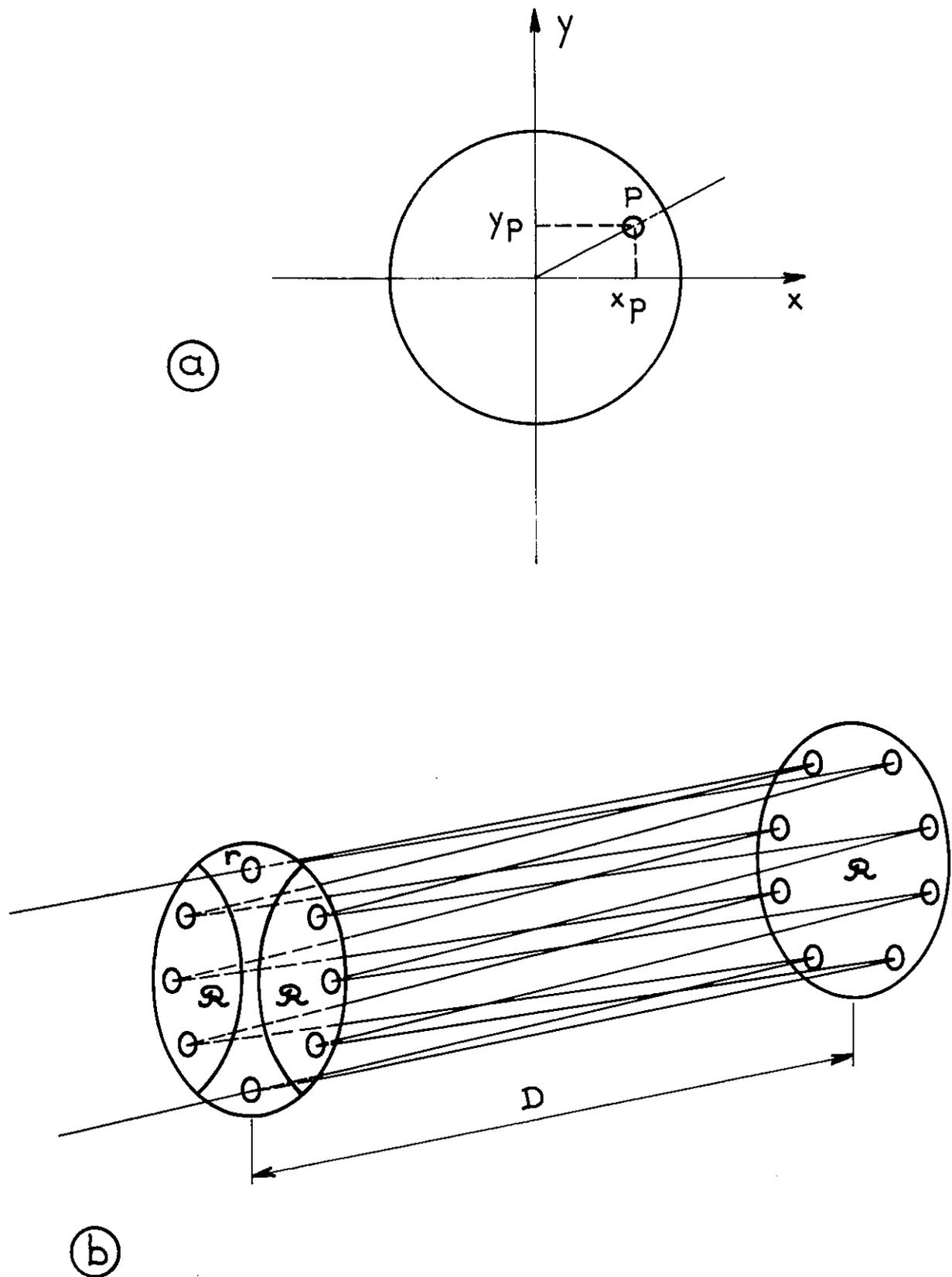
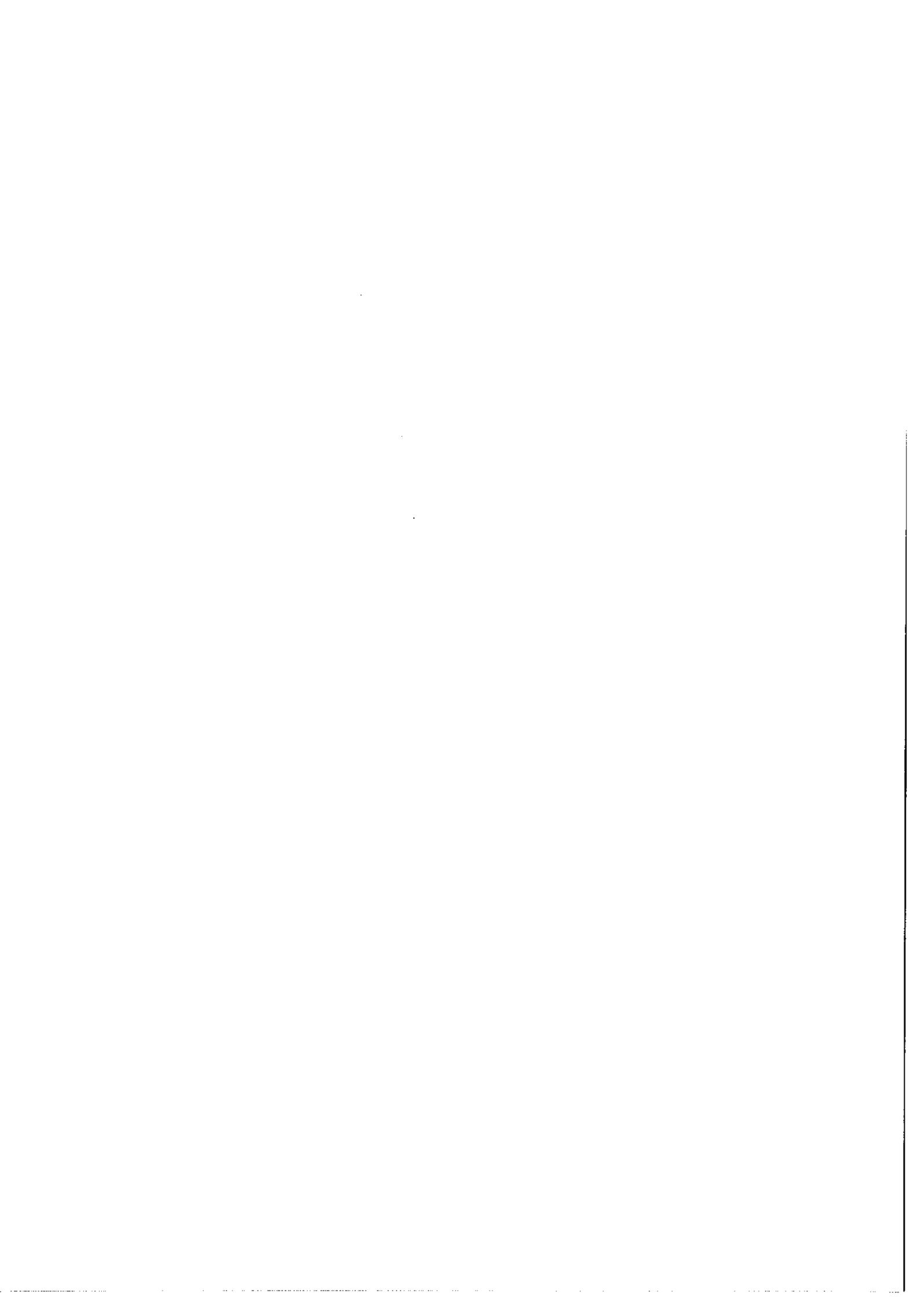


Figure 15

Fabry-Perot multipassages (F.P.M.P.) - Utilisation en transmission pour le calibrage de la fréquence laser.



Avec des miroirs astigmatiques de rayons de courbure R_x , R_y suivant les deux directions orthogonales ox , oy , la relation (1) se généralise et devient [52] :

$$(1)' \quad \begin{cases} x_p = A \sin(p \theta_x + \alpha) \\ y_p = B \sin(p \theta_y + \beta) \end{cases}$$

et la relation (2) s'écrit :

$$(2)' \quad \cos \theta_i = 1 - \frac{D}{R_i} \quad i = x, y$$

On obtient des courbes de Lissajous.

Revenons au cas de deux miroirs sphériques. Pour une distance D entre les miroirs convenablement choisie l'interféromètre multipassages présente un intervalle entre ordre N fois plus petit qu'un Fabry-Perot plan de même encombrement. Sa finesse réflectrice lorsque les deux miroirs ont même coefficient de réflexion \mathcal{R} est

$\mathcal{N} = \frac{\pi \sqrt{\mathcal{R}^N}}{1 - \mathcal{R}^N}$ (voir appendice paragr. A). Pour un Fabry-Perot plan de même épaisseur D elle serait $\mathcal{N}_0 = \frac{\pi \sqrt{\mathcal{R}}}{1 - \mathcal{R}}$. Si on suppose $\mathcal{R} = 1 - \varepsilon$

avec $\varepsilon \ll 1$ on trouve que $\mathcal{N} = \frac{\mathcal{N}_0}{N}$. La finesse réflectrice est divisée par le nombre de doubles passages. On peut compenser cette perte de finesse en choisissant pour \mathcal{R} une valeur aussi voisine que possible de l'unité. Dans ce cas l'interféromètre, s'il est utilisé en transmission, possède une luminosité très faible : il y a en effet $2N-1$ sorties possibles pour la transmission ; elles sont toutes équivalentes mais une seule est utilisée. Pour palier cet inconvénient on est amené à prendre pour la sortie choisie un pouvoir réflecteur plus faible. La perte de finesse qui en résulte est peu importante devant

le gain en luminosité. On gagne encore sur la transmission au sommet en prenant aussi pour le faisceau d'entrée un pouvoir réflecteur faible (en pratique on optimise en symétrisant l'ensemble avec un même pouvoir réflecteur r pour les faisceaux entrée-sortie). En définitive on doit utiliser des miroirs traités sectoriellement. Pour d'autres applications il peut être utile de travailler en réflexion (voir Chap. IV,A). Dans ce cas une seule sortie est possible, celle correspondant au faisceau d'entrée directement réfléchi et un seul secteur à pouvoir réflecteur faible suffit. Il faut noter que dans tous les cas la finesse globale reste altérée par les défauts de surface dont les effets peuvent devenir importants.

Ce dispositif est donc intéressant dans la mesure où il fournit un interfrange très faible avec un montage compact sans qu'il soit nécessaire de faire balayer l'interféromètre mais l'altération souvent importante de la finesse globale est un handicap pour l'analyse spectrale à haute résolution. Par contre pour un simple étalonnage on n'est pas très exigeant sur la finesse instrumentale et ce système convient bien. Notons aussi que, utilisé hors de l'axe, le Fabry-Perot ne provoque pas de lumière de retour vers le laser ce qui évite les couplages parasites entre les deux cavités.

L'étalon que nous avons utilisé (figure 15b) comporte deux miroirs sphériques de 11,82 mètres de rayon de courbure distants de 902 mm ($N = 8$). L'entre ordres est de 0,692 mK ce qui équivaut à un Fabry-Plan de 7,2 mètres d'épaisseur. Le système fonctionne en transmission. Par commodité nous avons utilisé comme faisceau de mesure

l'un des faisceaux sortant par le miroir d'entrée. Dans ce cas seul celui-ci est à secteurs ; les coefficients de réflexion entrée-sortie étant identiques les deux secteurs sont réunis en un seul de pouvoir réflecteur $r \approx 0,67$. L'autre partie du miroir d'entrée et toute la surface du second miroir (réflexions intermédiaires) sont traitées avec un pouvoir réflecteur maximum $R \approx 0,99$. L'ensemble est protégé des fluctuations thermiques par une monture métallique dans laquelle on peut éventuellement faire le vide. La figure 16 montre l'aspect du profil laser après passage dans l'interféromètre. Dans ce cas seule la fréquence du laser varie. Le profil "normal" du laser (fig. 13a) est modulé par la fonction d'appareil de l'interféromètre.

La distance entre franges est à peu près constante dans la partie centrale du profil. Elle est supérieure de 15% environ à celle que l'on pourrait déduire des valeurs des intervalles entre ordres de l'interféromètre et de la cavité laser si la fréquence du mode coïncidait avec celle de la cavité passive.

Accessoirement ce Fabry-Perot nous a été très utile pour tester la monochromaticité du laser. La durée limitée de l'impulsion laser impose une limite inférieure à la largeur spectrale du mode. Cette dernière est augmentée par les fluctuations de fréquence qui se produisent d'une impulsion à l'autre et aussi par les variations de phase au cours d'une même impulsion. Lors de la mise au point du laser nous ne disposons pas de détecteurs suffisamment rapides à $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$ pour observer directement l'évolution dans le temps d'une impulsion. L'analyse spectrale était alors un moyen d'obtenir néanmoins quelques

informations. En fait cette analyse n'a pu être que qualitative, la fonction d'appareil du Fabry-Perot ne pouvant être déterminée indépendamment avec précision faute de disposer d'une source adéquate. Nous avons principalement examiné l'évolution du taux de modulation des franges défini par $T_m = \frac{I_{\text{maximum}} - I_{\text{minimum}}}{I_{\text{maximum}}}$ en fonction de quelques paramètres : température du laser, intensité de crête du courant électrique, pouvoir réflecteur des miroirs de la cavité laser (essentiellement pour le miroir de sortie) et nature du gaz porteur. Expérimentalement, on constate qu'un accroissement de la température de la vapeur, tout comme l'augmentation du pouvoir réflecteur du miroir de sortie, conduit à une augmentation du taux de modulation. Ce résultat est prévisible puisque dans les deux cas on augmente la durée de l'effet laser soit en augmentant le nombre des atomes actifs, soit en diminuant les pertes dans la cavité. Notons que si on accroît la longueur de la cavité pour un même pouvoir réflecteur l'effet est encore une amélioration dans la modulation. Si l'on modifie l'excitation électrique le taux de modulation passe par un maximum pour une certaine valeur du courant de crête. Ceci peut s'expliquer par l'apparition à excitation élevée de plusieurs impulsions laser successives sans relation de phase entre elles (voir 2ème partie Chap. IV,A). La valeur du courant de crête optimal dépend beaucoup de la température et de l'état de vieillissement du tube à décharge ; elle est généralement de l'ordre d'une centaine d'ampères. Enfin, nous avons constaté que le taux de modulation ne dépend pas de la nature du gaz porteur.

Nous avons également examiné la stabilité en fréquence du point de vue des dérives lentes du laser et des fluctuations d'une impulsion

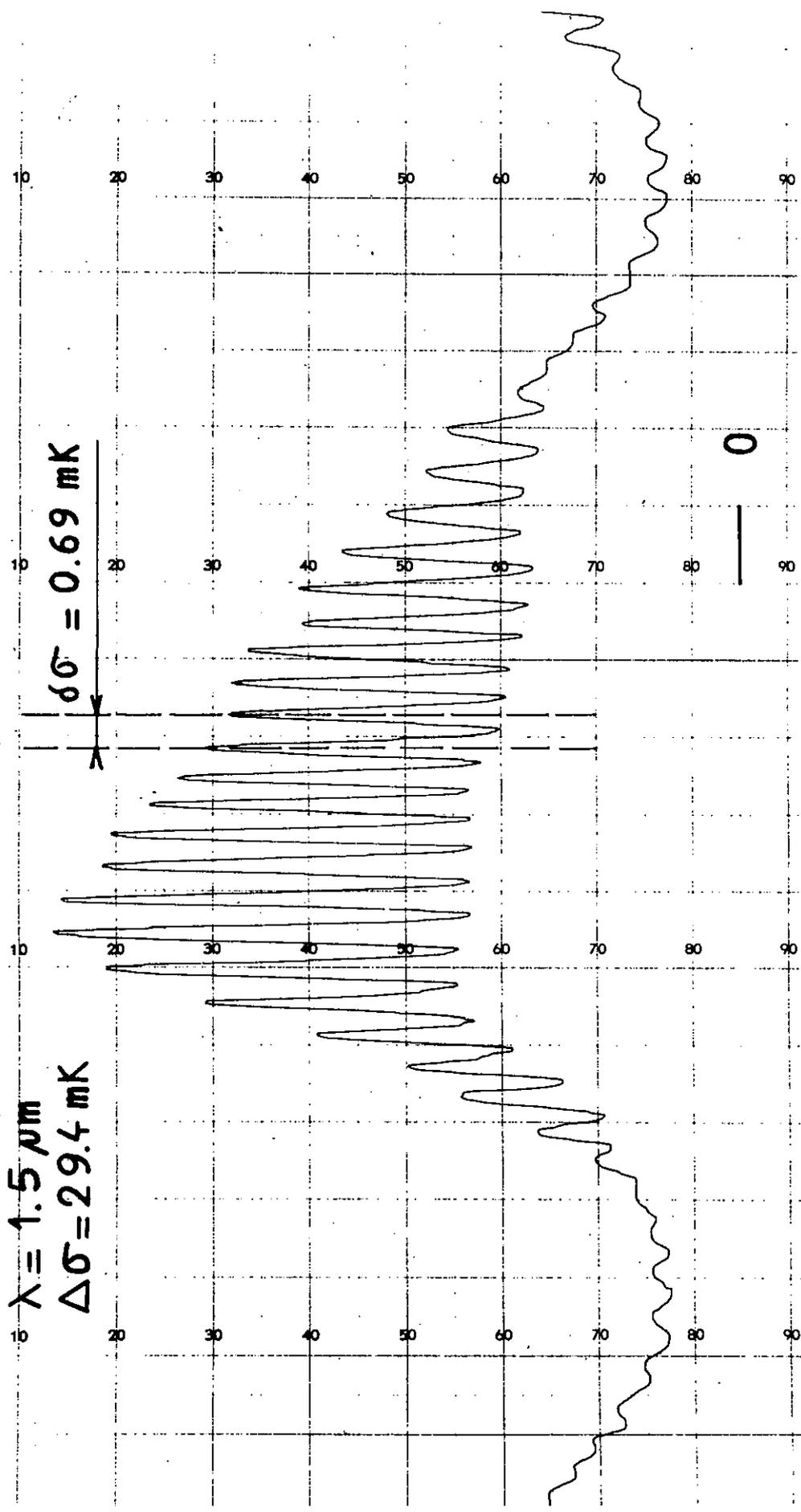
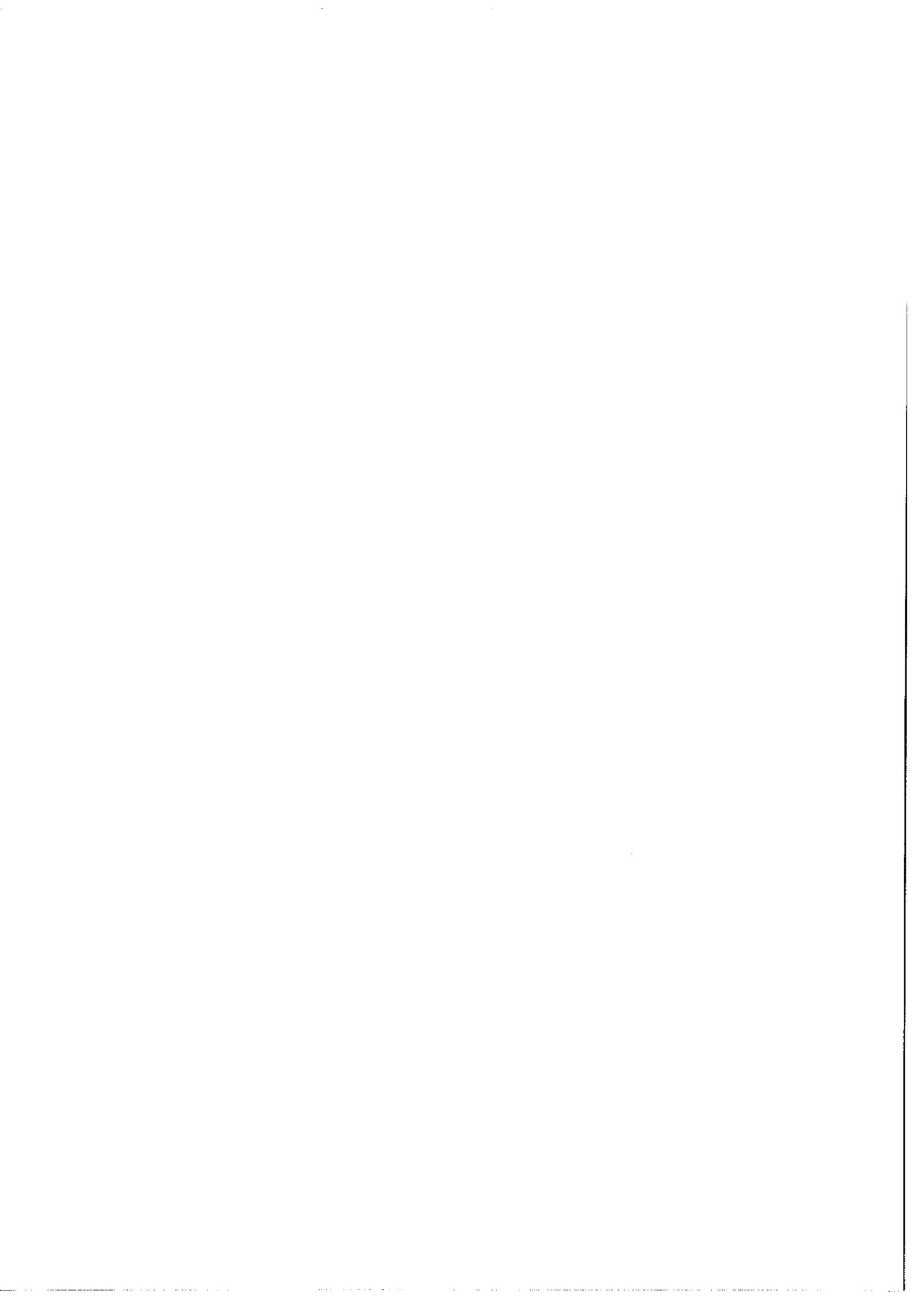


Figure 16

Enregistrement du profil de la raie laser $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$ après la traversée du F.P.M.P.



à l'autre, de la façon suivante. On arrête le balayage de la fréquence laser lorsqu'elle correspond au flanc d'une frange du Fabry-Perot multi-passages et on enregistre l'intensité avec une constante de temps très faible. La valeur moyenne renseigne sur les dérives lentes. Les fluctuations rapides du signal, comparées à celles obtenues en sommet de frange (pour s'affranchir de l'effet propre aux fluctuations d'intensité du laser) donnent une idée des écarts en fréquence des impulsions. Lorsque le laser a atteint son équilibre thermique (une demi-heure environ après sa mise en marche) il n'y a pas de dérive appréciable de la fréquence sur une durée d'enregistrement de plusieurs minutes. Quant aux fluctuations de fréquence elles sont en général inférieures à 0,05 mK.

En pratique dans les meilleures conditions nous avons observé un taux de modulation de l'ordre de 80%. Compte tenu de la fonction d'appareil propre à l'interféromètre il semble raisonnable d'estimer la largeur spectrale du mode à une valeur maximum d'environ 0,2 mK (la largeur due à la seule durée de l'impulsion est évidemment un peu plus faible). Si l'on admet que l'impulsion laser, après une montée infiniment raide, décroît exponentiellement, la durée minimum correspondante est de 30 nsec. On peut remarquer que cette valeur est du même ordre de grandeur que le temps de parcours total de l'interféromètre (2N fois sa longueur) par la lumière (48 nsec.). Des impulsions plus courtes rendraient impossible l'emploi d'un interfrange aussi serré. Par contre dans ce cas un tel instrument est particulièrement bien adapté au fonctionnement en ligne à retard. Avec des miroirs asphériques Herriott et Schulte [52] ont réalisé une ligne à retard de 10µsec.

Nous même avons appliqué cette intéressante propriété dans l'expérience décrite à la fin de la deuxième partie (Chapitre IV).

Remarque

Cet interféromètre utilisé en passages multiples peut servir à la mesure de coefficients de réflexion élevés, problème difficile lorsque ceux-ci sont voisins de l'unité (cas, par exemple, de miroirs de cavité laser). On conçoit qu'ici l'intensité du faisceau de sortie, étant donné le grand nombre de réflexions intermédiaires, dépende beaucoup de R . On montre que le procédé permet de mesurer directement R (et non pas la transmission) avec une bonne précision. On trouvera en appendice (paragr. A) la proposition d'une méthode de mesure de R .

On trouvera également en appendice le calcul du taux de modulation du F.P.M.P. en fonction de la durée de l'impulsion laser comparée au temps de parcours du Fabry-Perot, ainsi qu'une étude de son comportement en tant que ligne à retard.

2ème partie

SPECTROSCOPIE SANS EFFET DOPPLER

Dans cette seconde partie le Chapitre I est consacré à la description de deux expériences préliminaires d'absorption sans effet Doppler. Il est suivi d'un chapitre dans lequel sont présentés quelques aspects théoriques de l'absorption saturée (notamment le calcul du profil du coefficient d'absorption en présence d'un champ saturant et des intensités relatives des résonances dans le cas d'une raie présentant une structure). Dans les chapitres III et IV est exposée la mise au point de deux expériences utilisant les méthodes de l'absorption saturée. La première concerne l'étude d'une structure hyperfine serrée (de l'ordre de grandeur de la largeur due à l'effet Doppler) ; elle met à profit le gain en résolution dû à la finesse des résonances qu'elles permettent d'obtenir. La seconde est une étude en dynamique des effets des collisions. En fait, lorsqu'elle est appliquée à des raies sans structure, la première méthode donne aussi des renseignements sur les effets des collisions à partir du profil homogène enregistré. En ce sens les deux méthodes sont complémentaires. Elles font du reste appel au même phénomène fondamental (perturbation sélective de la population des niveaux).

Dans ces deux expériences nous utilisons la source laser décrite dans la première partie. J'ai étudié la transition $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$ du baryum pour laquelle les calculs prévoient une structure hyperfine de l'ordre de grandeur de la largeur Doppler.

CHAPITRE I

EXPERIENCES PRELIMINAIRES.A) ABSORPTION LINEAIRE DANS UN JET ATOMIQUE.

A l'époque où avait été envisagée la mesure de la structure hyperfine de la raie à $1,5 \mu\text{m}$ du baryum les possibilités de la saturation de l'absorption étaient encore mal connues notamment en spectroscopie atomique, domaine où aucune expérience de ce genre n'avait été réalisée. C'est pourquoi nous avons d'abord songé à faire cette mesure à l'aide d'une expérience d'absorption simple (linéaire) associant le laser monomode à un jet atomique à vapeur de baryum.

Seul a été réalisé un jet de conception très simple (figure 17a). Il est constitué d'un tube de quartz comportant une réserve pour le métal et deux étranglements de 8 mm de diamètre distants de 8 cm. Le peuplement du niveau métastable 1D_2 est obtenu indirectement par pompage optique (fig. 17b). Le flux d'une cathode creuse à baryum est concentré dans la zone de formation du jet et permet de peupler par absorption le niveau résonant 1P_1 ; à partir de là une partie des atomes (1% environ) effectuent la transition vers le métastable et y

restent. Le faisceau laser traverse le jet dans une direction perpendiculaire à la fois au jet et au faisceau de pompage. Dans un premier temps nous avons cherché à tester les performances du jet en analysant l'absorption de la raie de résonance émise par la cathode creuse. Dans ce but, un Fabry-Perot plan de 5 cm d'épaisseur explore le profil de la raie de résonance. Comme le montre l'enregistrement de la figure 18, nous avons observé une absorption relative importante (40% environ au centre du profil) pour une température du jet de 700°C. Sur cet enregistrement la largeur du profil d'absorption (13 mK) est bien inférieure à celle du profil d'émission (largeur Doppler à 700°C de la raie 5 535 Å: 34,3 mK). Elle est néanmoins nettement supérieure à la largeur résiduelle théorique du jet donnée par le rapport de collimation (2 mK compte tenu de la largeur naturelle). Ceci est dû à l'angle solide assez important avec lequel le jet est éclairé et à la résolution instrumentale du montage d'analyse Fabry-Perot.

Malheureusement avec ce montage simple nous n'avons pu observer d'absorption sur la raie laser infrarouge. Dans ce résultat négatif on doit d'abord incriminer la méthode de peuplement du métastable : le rapport des forces d'oscillateur pour les deux transitions possibles à partir du niveau résonant est $\frac{f(5\ 535)}{f(15\ 000)} = \frac{1,5}{0,1}$ [53]. Compte tenu du rapport des longueurs d'onde ceci entraîne qu'un peu moins de 1% des atomes pompés sur le niveau résonant retournent effectivement sur le métastable et peuvent participer à l'absorption par le faisceau infrarouge. Compte tenu de la densité du jet (environ $3 \cdot 10^{12}$ at/cm³) et de son diamètre cette absorption devait être très faible dans nos conditions expérimentales et masquée par les fluctuations d'intensité du

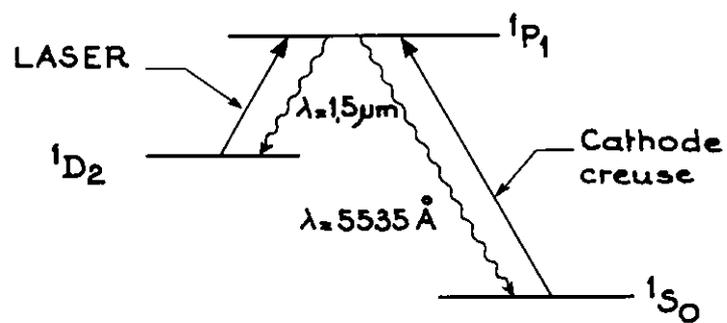
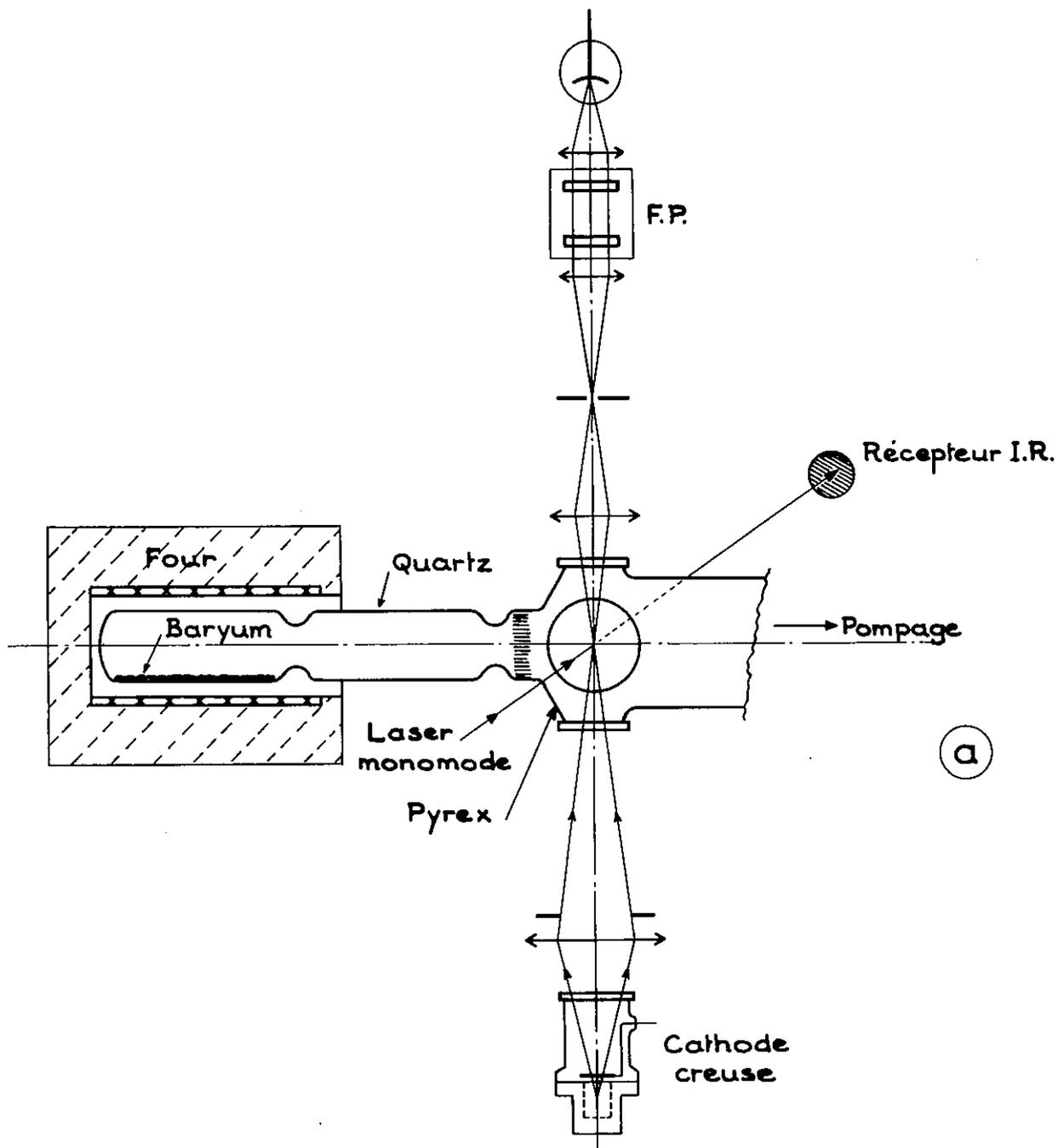
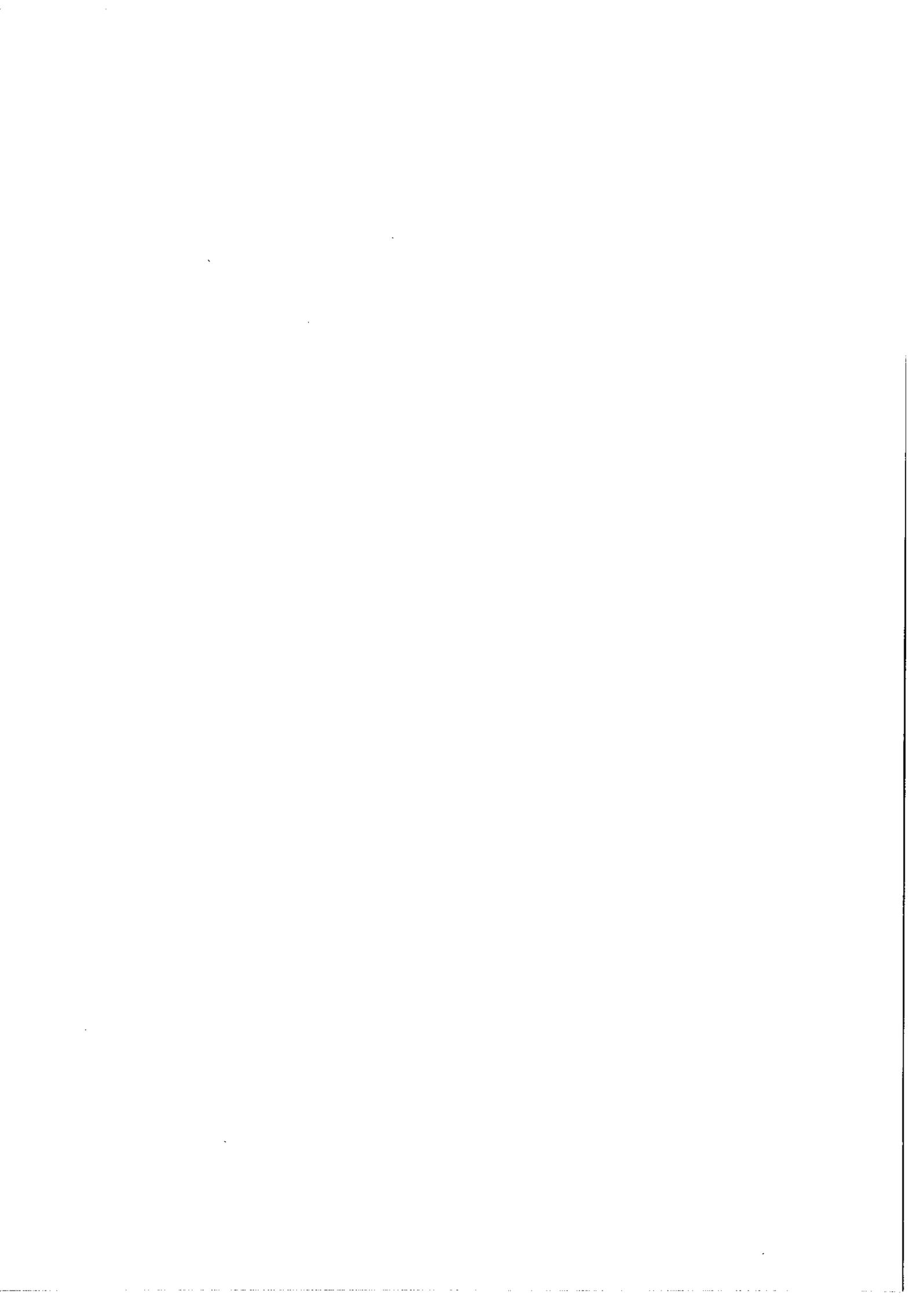


Figure 17

Absorption de la raie laser à $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$ par un jet à vapeur de baryum optiquement excité.



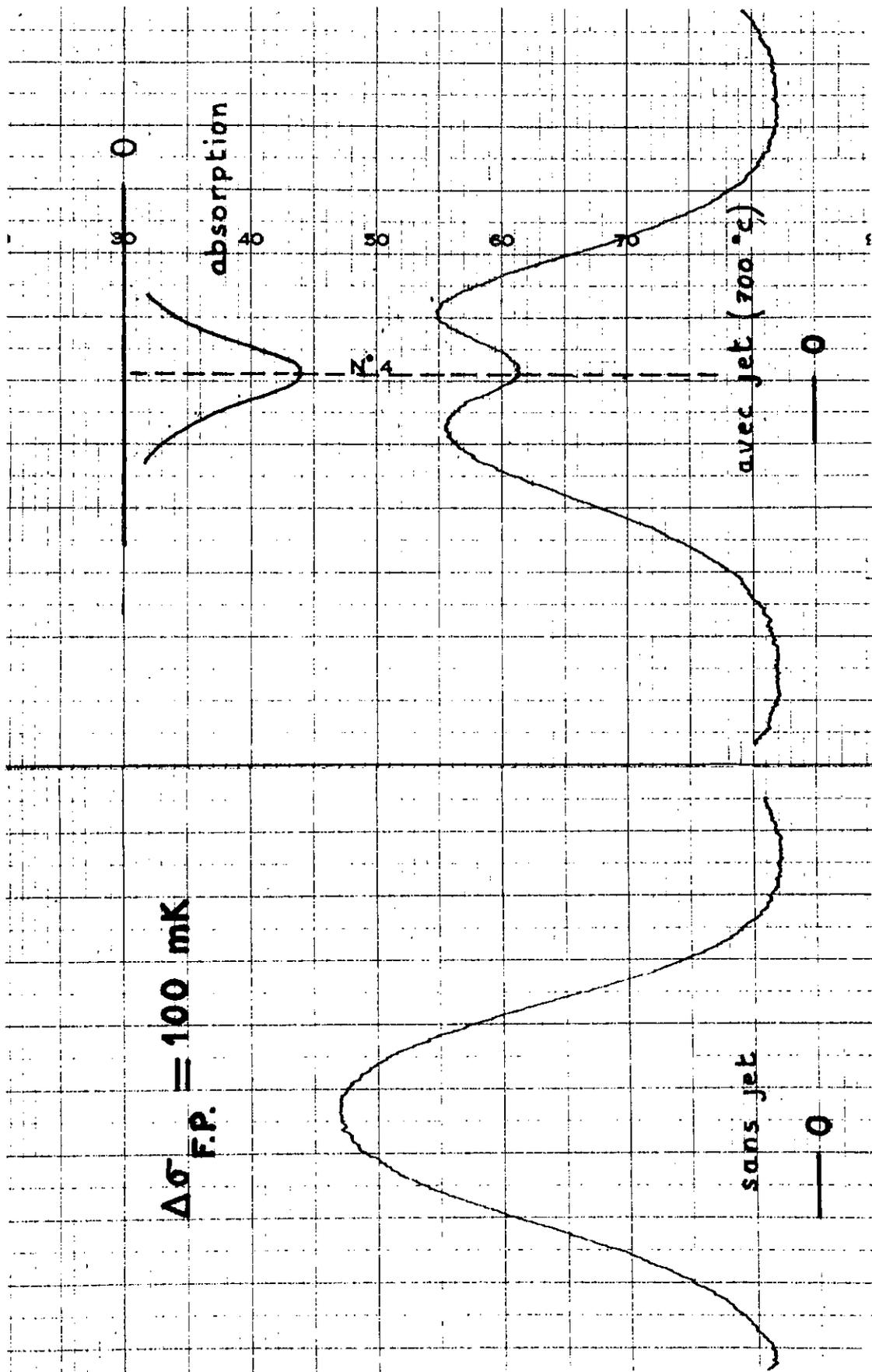
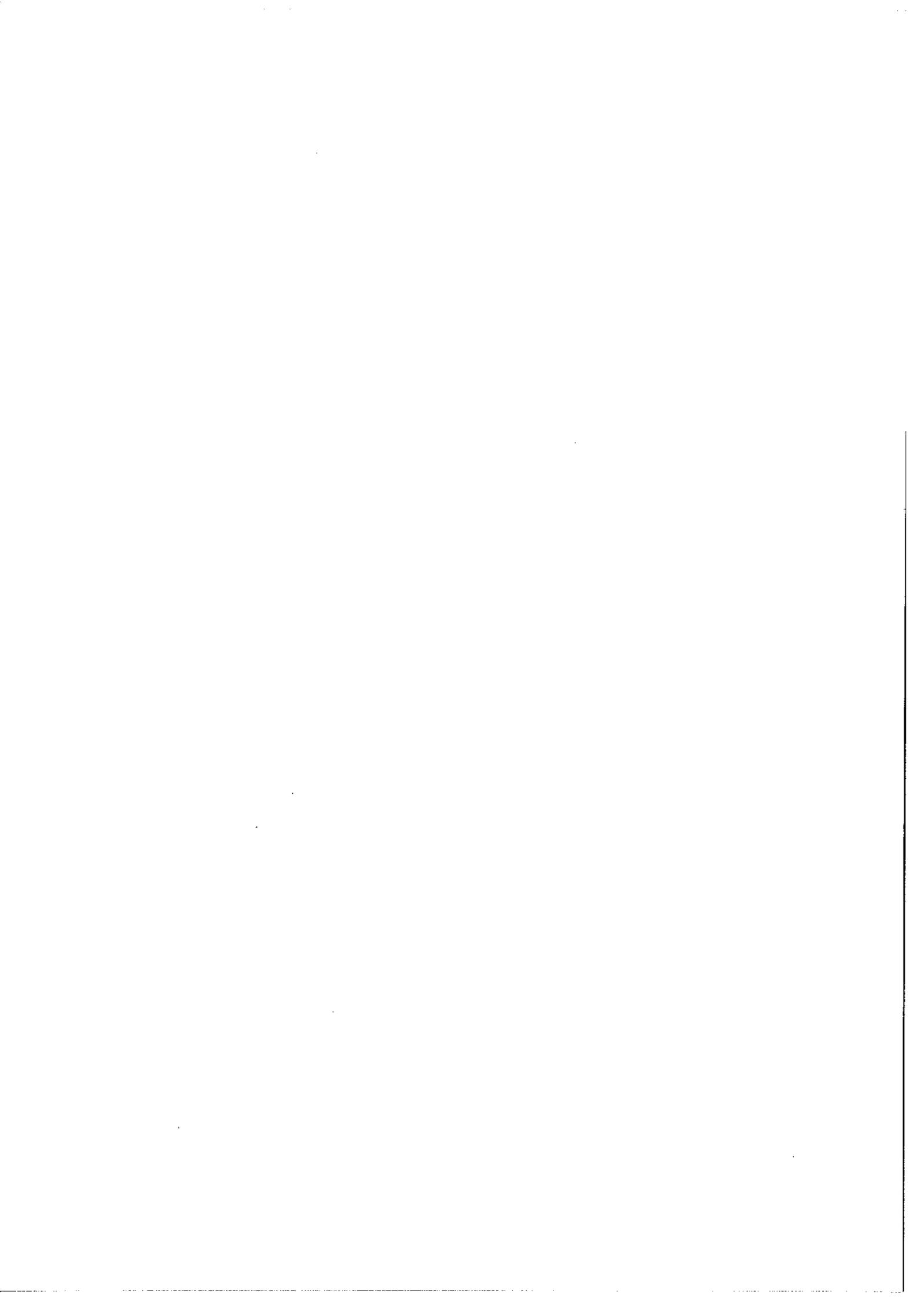


Figure 18

Enregistrement de l'absorption de la raie de résonance par le jet atomique.



laser. Comme nous ne disposions pas à l'époque de moyens de détection des signaux faibles adaptés au fonctionnement en impulsions du laser il n'est pas étonnant que, sous cette forme simple, cette première expérience n'ait pas abouti.

Il était possible d'améliorer ce montage sur plusieurs points mais au prix de complications expérimentales notables ⁽¹⁾. C'est pourquoi, compte tenu du développement rapide des méthodes de saturation de l'absorption, nous avons songé à les appliquer à notre problème particulier. Le remplacement du jet comme absorbant par un tube à décharge présente plusieurs avantages. La mise en oeuvre est plus simple et il est aisé d'obtenir un bon peuplement du métastable par un courant continu, même avec une pression de vapeur faible. Si besoin est, il est possible d'accroître l'absorption en augmentant la longueur du tube (à 620°C soit pour une pression de vapeur métallique de $0,75 \cdot 10^{-2}$ torr, c'est-à-dire une population de $8 \cdot 10^{13}$ at./cm³ sur le fondamental, nous avons obtenu un coefficient d'absorption de l'ordre de 1%

(1) Par exemple plusieurs auteurs ont utilisé une excitation électronique d'un jet à vapeur de baryum et ont obtenu par cette technique un peuplement très efficace des métastables [54]. L'excitation purement optique elle-même pouvait être améliorée par l'emploi d'un Fabry-Perot sphérique ; placé de part et d'autre du jet dans la direction d'illumination, il augmenterait beaucoup l'efficacité du pompage par cathode creuse. De plus, il devrait être possible actuellement de remplacer la cathode creuse par un laser à colorant.

par cm) . De plus la consommation de métal est bien inférieure à celle du jet et sur ce point encore notre jet aurait dû être amélioré lors de l'emploi d'isotopes purs. En définitive nous avons abandonné ce premier montage et nous nous sommes orienté vers les méthodes de saturation.

B) ABSORPTION SATURÉE DANS UN TUBE A DÉCHARGE.

Lorsqu'un milieu absorbant est soumis à l'action d'une onde monochromatique intense (faisceau saturant) de fréquence ω_L voisine de la fréquence ω_0 de l'une de ses transitions d'absorption, le profil de répartition des vitesses pour les atomes de cette transition est modifié (fig. 19a) : il présente une perturbation centrée sur $k v = \omega_L - \omega_0$ où v représente la composante de la vitesse suivant la direction de propagation du faisceau et k est le vecteur d'onde. En effet, les seuls atomes en interaction avec le champ sont ceux qui, par suite de l'effet Doppler, "voient" le rayonnement avec la fréquence ω_0 (si $\omega_L = \omega_0$ la classe d'atome correspondante est celle pour laquelle $v = 0$). En fait, à cause de l'élargissement homogène, la perturbation à une certaine largeur $k \cdot \delta v$ de l'ordre de grandeur de la largeur homogène de la transition augmentée des effets de saturation (voir Chap. II). Si le profil d'absorption de la transition, ainsi perturbé, est analysé à l'aide d'un deuxième faisceau d'intensité faible (faisceau sonde) de sens opposé et de fréquence ω'_L le profil obtenu présente au voisinage de $\omega'_L - \omega_0 = -(\omega_L - \omega_0)$ une perturbation dont la largeur, à saturation faible, est deux fois la largeur homogène (fig. 19b). Dans le cas particulier où le faisceau sonde est de même

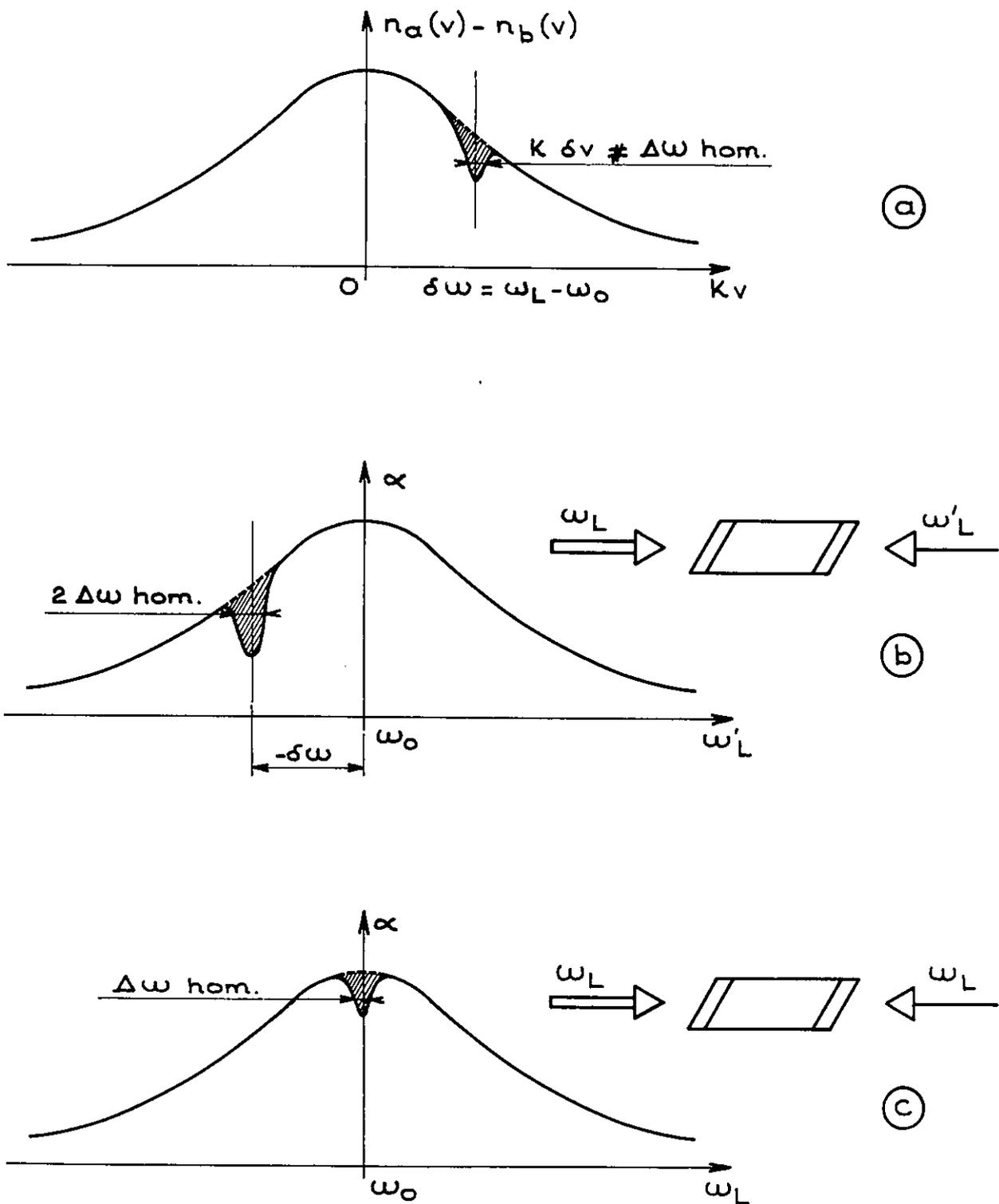
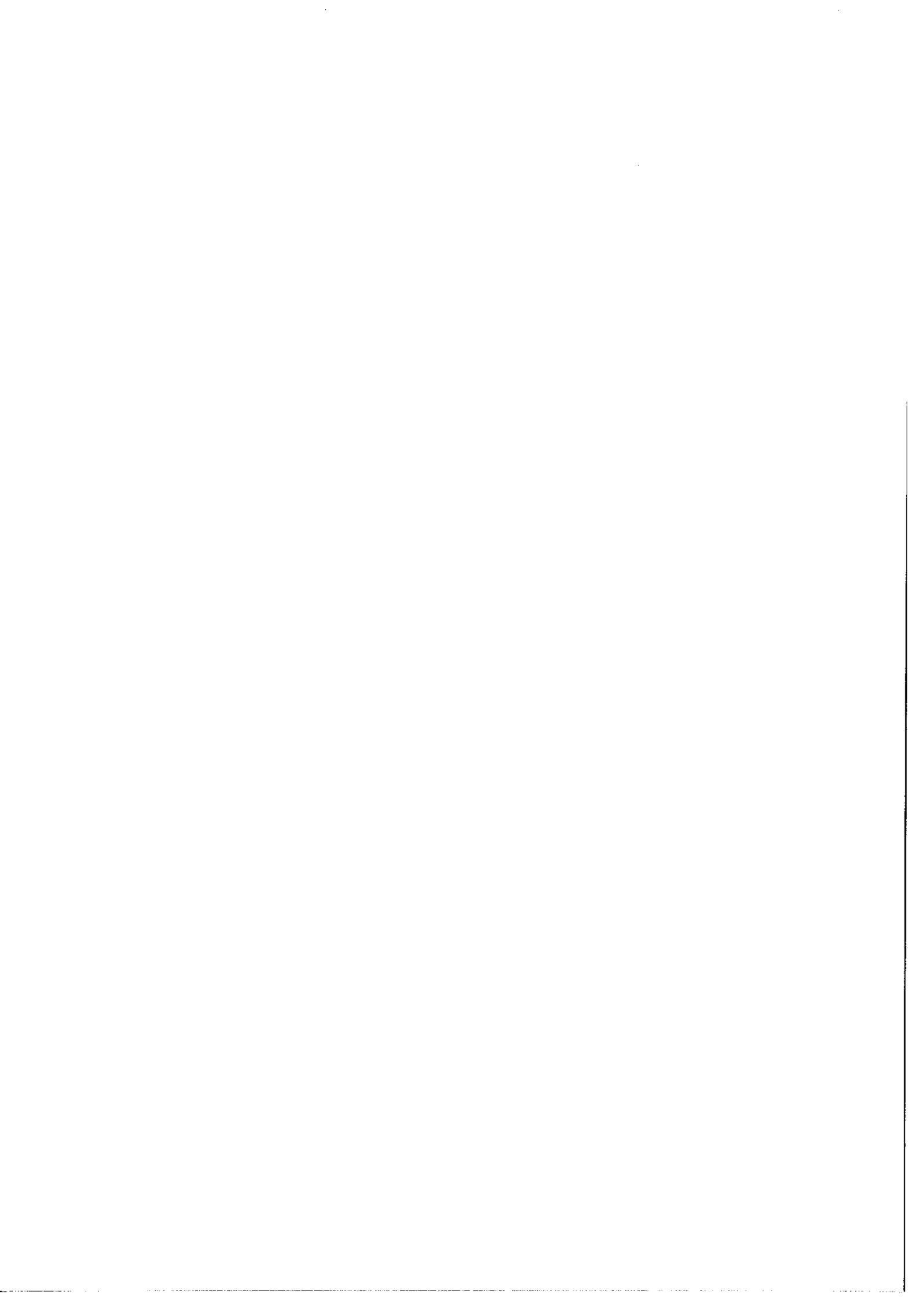


Figure 19

- (a) Perturbation du profil de répartition des vitesses des atomes par le champ saturant. (b) Exploration du profil d'absorption, montage à deux lasers. (c) Montage à laser unique.



fréquence et de sens opposé au faisceau saturant (cas de la fig. 2b de l'introduction) les seuls atomes en interaction simultanée avec les deux champs sont ceux de vitesse longitudinale nulle et la perturbation apparaît au centre du profil (fig. 19c). Cette fois sa largeur, à saturation faible est égale à la largeur homogène. Dans les deux cas la perturbation apparaît comme une diminution du coefficient d'absorption α et le profil de la perturbation seule est approximativement une fonction de Lorentz. Le fait que dans le second cas (faisceau sonde de sens opposé et de même fréquence) on observe une résonance de largeur plus faible d'un facteur deux ne doit pas étonner : tout se passe en effet comme si on avait deux balayages du profil, simultanés et de sens opposés. Cependant il faut noter que les deux méthodes conduisent à la même résolution puisque lorsque l'un des faisceaux est à fréquence fixe tous les écarts sont doublés. Ceci est illustré par la figure 20 : en supposant que l'on analyse un profil composé de deux transitions de fréquence ω_1 et ω_2 d'écart $\Delta\omega$ très faible par rapport à la largeur Doppler (composantes isotopiques par exemple) on voit que la première méthode conduit à deux résonances distantes de $2\Delta\omega$ avec pour largeur $2\Delta\omega_{\text{hom}}$. En effet ω_L étant fixé les atomes en interaction avec le champ sonde sont ceux de vitesse $-\frac{1}{k'}(\omega_L' - \omega_1)$ et $-\frac{1}{k'}(\omega_L' - \omega_2)$. Il y a résonance pour $\omega_L' = \omega_1$ et ω_2 tels que : $\omega_1' - \omega_1 = -(\omega_L - \omega_1)$ et $\omega_2' - \omega_2 = -(\omega_L - \omega_2)$ d'où l'écart $\omega_1' - \omega_2' = 2\Delta\omega$. Pour la seconde méthode les résonances ont lieu pour $\omega_L = \omega_1$ et ω_2 et l'écart est bien $\Delta\omega$ avec pour largeur des résonances $\Delta\omega_{\text{hom}}$.

Dans une expérience préliminaire nous avons d'abord cherché à mettre en évidence le pic de résonance dans le profil d'absorption.

Pour cela nous avons réalisé le montage de la figure 21. Il est identique dans son principe au schéma de la figure 2b . Le laser source est celui déjà décrit dans la première partie. La cuve à absorption est un tube à décharge excité en continu. Elle est placée à l'extérieur de la cavité laser. On peut ainsi utiliser un faisceau sonde d'intensité très faible devant celle du faisceau saturant ; le contraste est optimum (voir Chap. II) et il n'y a pas d'élargissement supplémentaire dû à la saturation propre du faisceau sonde. De plus la cuve, si elle était placée dans la cavité, introduirait une distorsion supplémentaire de l'échelle des fréquences particulièrement gênante dans le cas de l'étude d'une structure. La conception du tube à décharge est analogue à celle du laser, seules les dimensions sont différentes (diamètre interne 20 mm, longueur chauffée 25 cm). Le chauffage est assuré par un four annulaire à double enroulement afin d'éviter la présence d'un champ magnétique. Un petit effet Zeeman suffirait en effet à perturber le profil et l'intensité de la résonance, étant donnée sa faible largeur. Enfin nous avons utilisé du baryum naturel qui comprend essentiellement l'isotope 138 (72% environ).

Le dispositif optique (fig.21) comprend une lentille L qui concentre au mieux le faisceau saturant dans le milieu absorbant, un miroir concave M , de même rayon de courbure que la surface d'onde renvoie le faisceau dans la direction d'incidence ⁽¹⁾ : les deux

(1) La connaissance de la géométrie de la cavité laser permet, à partir de relations connues [55], le calcul de la focale de L et du rayon de courbure de M de façon à réaliser au mieux la conjugaison laser-tube à décharge et à conserver la courbure de l'onde après réflexion sur M .

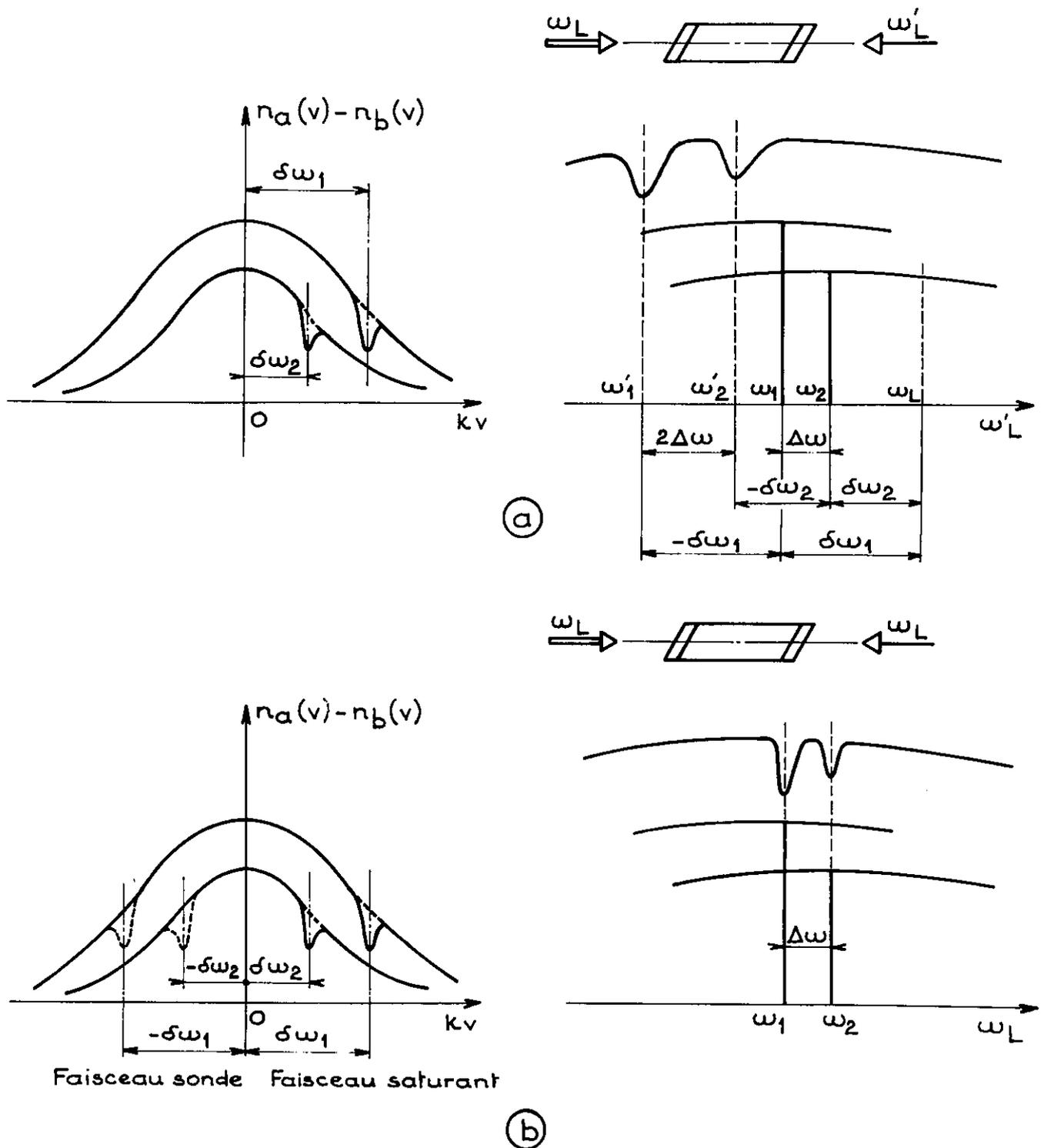
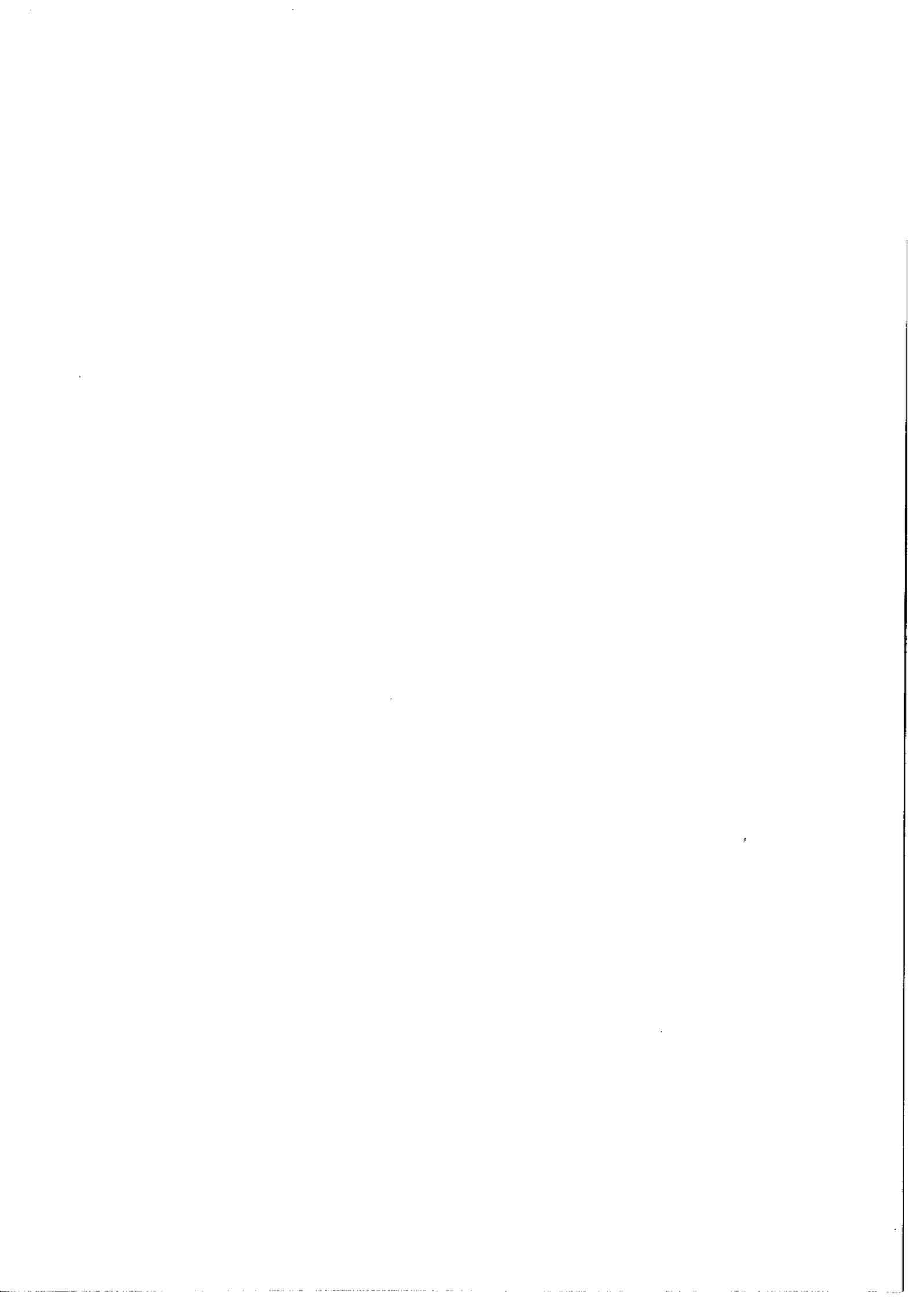


Figure 20

Comparaison des deux méthodes d'analyse dans le cas d'une structure. (a) : analyse par un laser sonde de fréquence $\omega'_L \neq \omega_L$ fréquence fixe du laser saturant (b) : analyse à l'aide d'un laser unique ; balayage simultané par les deux faisceaux.



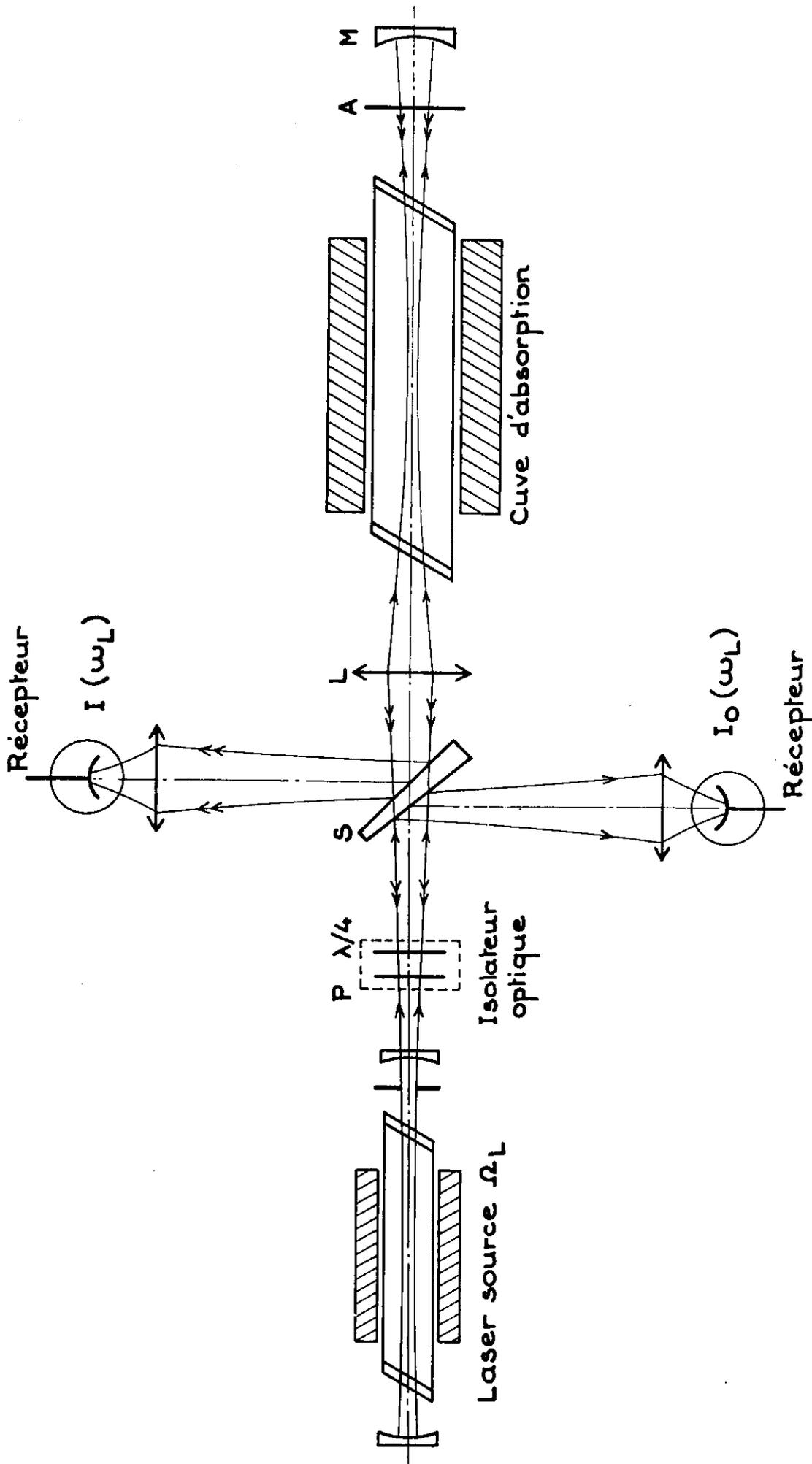
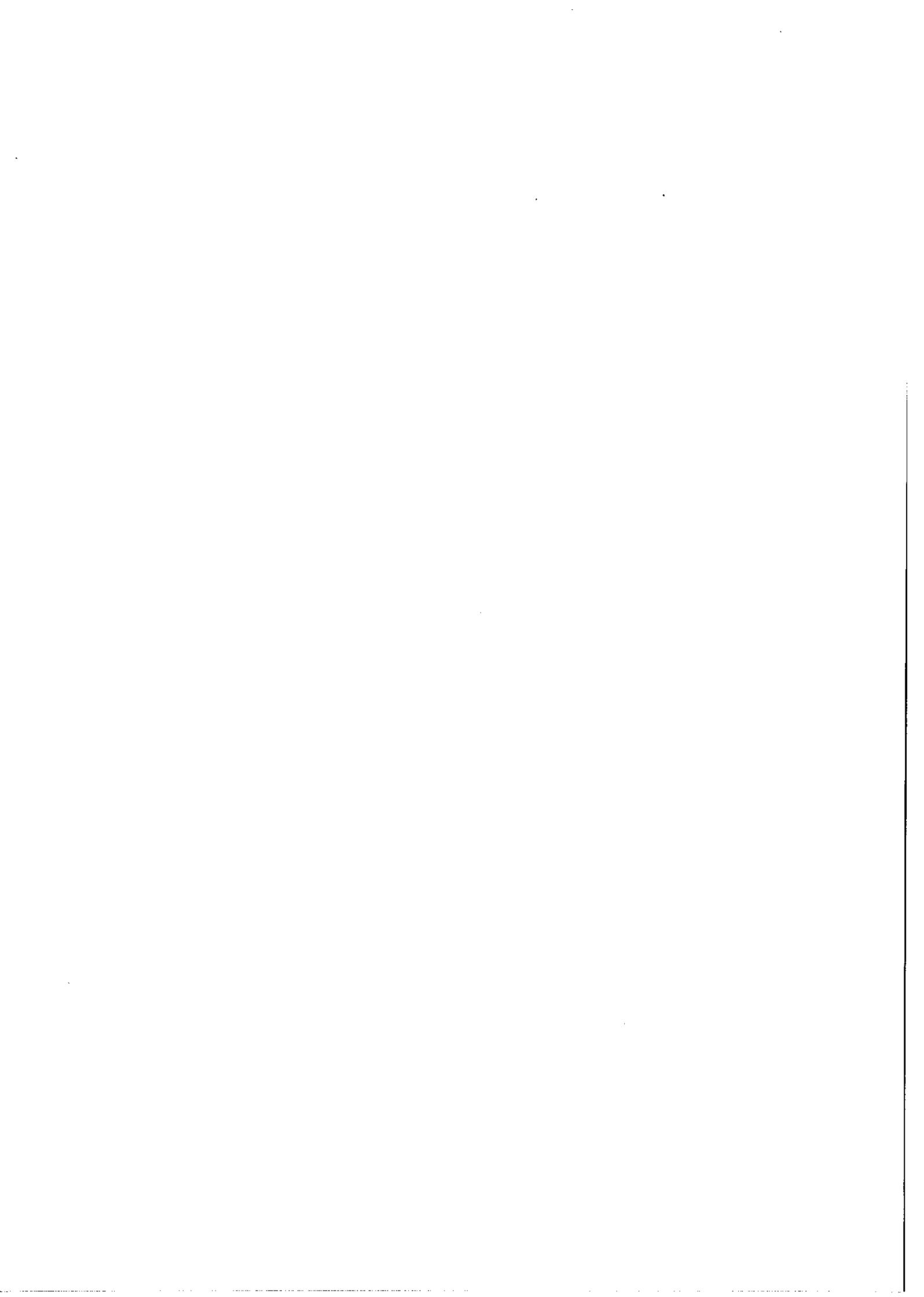


Figure 21

Saturation de l'absorption pour la raie $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$ du baryum. Montage simplifié. Pour la clarté du dessin les dimensions transversales des faisceaux ont été amplifiées.



faisceaux aller et retour se superposent alors exactement. L'atténuateur A permet de travailler avec un faisceau sonde de faible intensité. La lame nue s , légèrement prismatique, prélève une partie du faisceau sonde (I) et une partie du faisceau de saturation. L'énergie prélevée sur le faisceau saturant sert de référence (I_0). Les détecteurs sont deux photodiodes au germanium (maximum de sensibilité à $\lambda = 1,55 \mu\text{m}$). Un piège à lumière constitué d'une lame quart-d'onde et d'un polariseur diminue les effets parasites dus à la lumière de retour qui pénètre dans la cavité laser. La comparaison directe des profils $I(\omega_L)$ et $I_0(\omega_L)$ à l'aide d'un enregistreur deux voies ne nous a pas permis de mettre en évidence le pic de résonance ; son amplitude faible devant celle du signal laser est masquée par les fluctuations d'intensité de la source. Aussi nous avons amélioré la méthode de détection par la mise au point d'un système électronique adapté à la détection des impulsions et qui permet d'enregistrer la quantité $\frac{I - I_0}{I_0}$. Nous décrirons en détails cet ensemble au Chapitre III. Son principal avantage est de diminuer l'influence des fluctuations d'intensité de source. De plus puisque $I = I_0 e^{-\alpha(\omega_L)\ell}$ (ℓ longueur de la cuve) on enregistre directement le profil du coefficient d'absorption $\alpha(\omega_L)$ du moins dans le cas d'une absorption faible ($\alpha(\omega_L)\ell \ll 1$). Nous avons aussi cherché à accroître l'amplitude du signal de saturation par l'augmentation de la puissance du rayonnement incident. Comme nous ne pouvions guère gagner sur la puissance émise par le laser, nous avons tenté d'amplifier le faisceau laser.

A priori, le problème de l'amplification est simple. Il suffit de disposer à la sortie du laser d'un tube à décharge analogue au tube

laser et excité lui aussi en impulsions. En pratique une amplification stable est très difficile à obtenir car les deux tubes ne se déclenchent pas, en général, de façon parfaitement synchrone. Entre le début de l'impulsion électrique et celui de l'effet laser il existe un petit retard aléatoire (de l'ordre d'une fraction de microseconde) dont les causes sont multiples : temps d'ionisation du milieu, effets capacitifs dus par exemple aux parois métalliques des fours, etc Il dépend des dimensions géométriques du tube, de son vieillissement (métallisation des parois) des pressions partielles de vapeur métallique et de gaz porteur et aussi, bien entendu, de l'excitation. Le déclenchement du tube amplificateur présente lui aussi cette irrégularité. Il est donc très délicat d'obtenir un déclenchement bien simultané des deux tubes. Indépendamment de ce problème l'expérience nous a montré qu'il n'existe qu'une très faible marge de température (ou d'excitation) entre le domaine d'amplification et celui où apparaît la superradiance. Malgré ces difficultés nous avons réussi à faire fonctionner le montage présenté sur la figure 22. Les deux tubes (laser et amplificateur) et les fours sont aussi identiques que possible (en particulier en longueurs et diamètres). Le montage électrique permet de superposer aux impulsions un très faible courant continu (1 mA environ). On facilite ainsi la régularité de l'allumage. On ajuste l'instant du déclenchement de l'amplificateur sur celui du laser par modification de la pression du gaz porteur. Ce procédé laisse subsister les effets des fluctuations aléatoires des déclenchements et le signal obtenu est assez bruyant. Pour une température de 650°C du tube amplificateur nous avons mesuré pour le centre du profil un gain de 4 dB/cm (dans

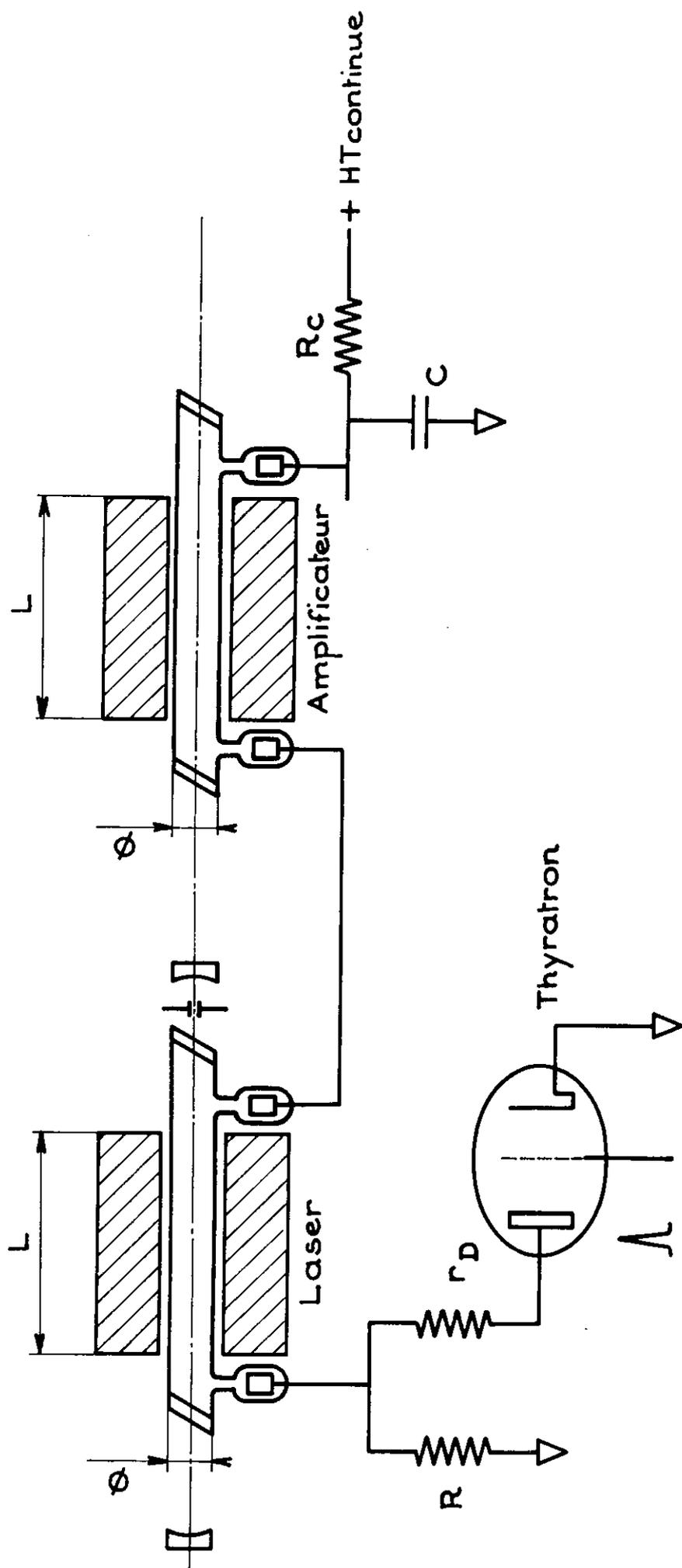
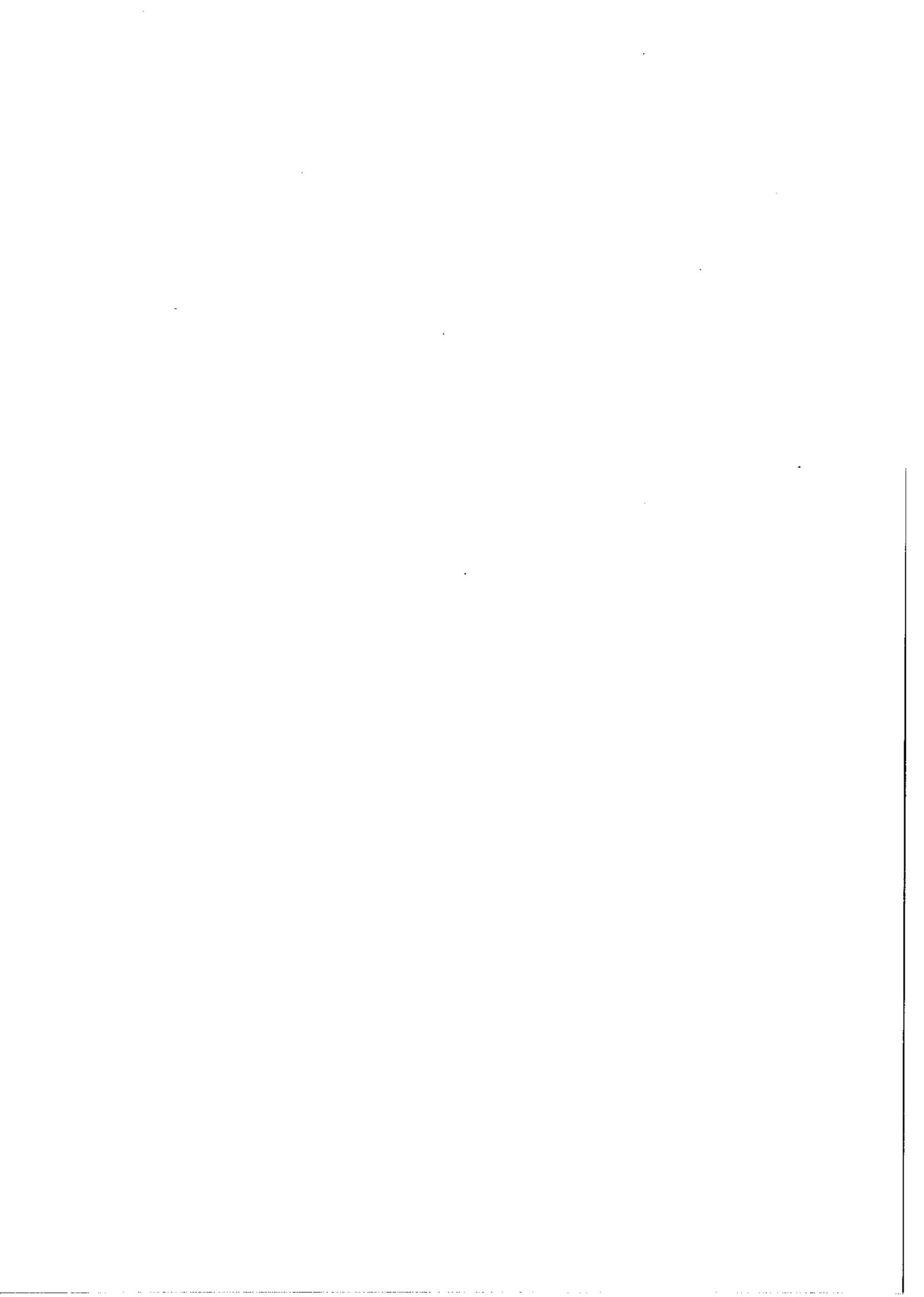


Figure 22

Amplification de l'émission laser en impulsions.



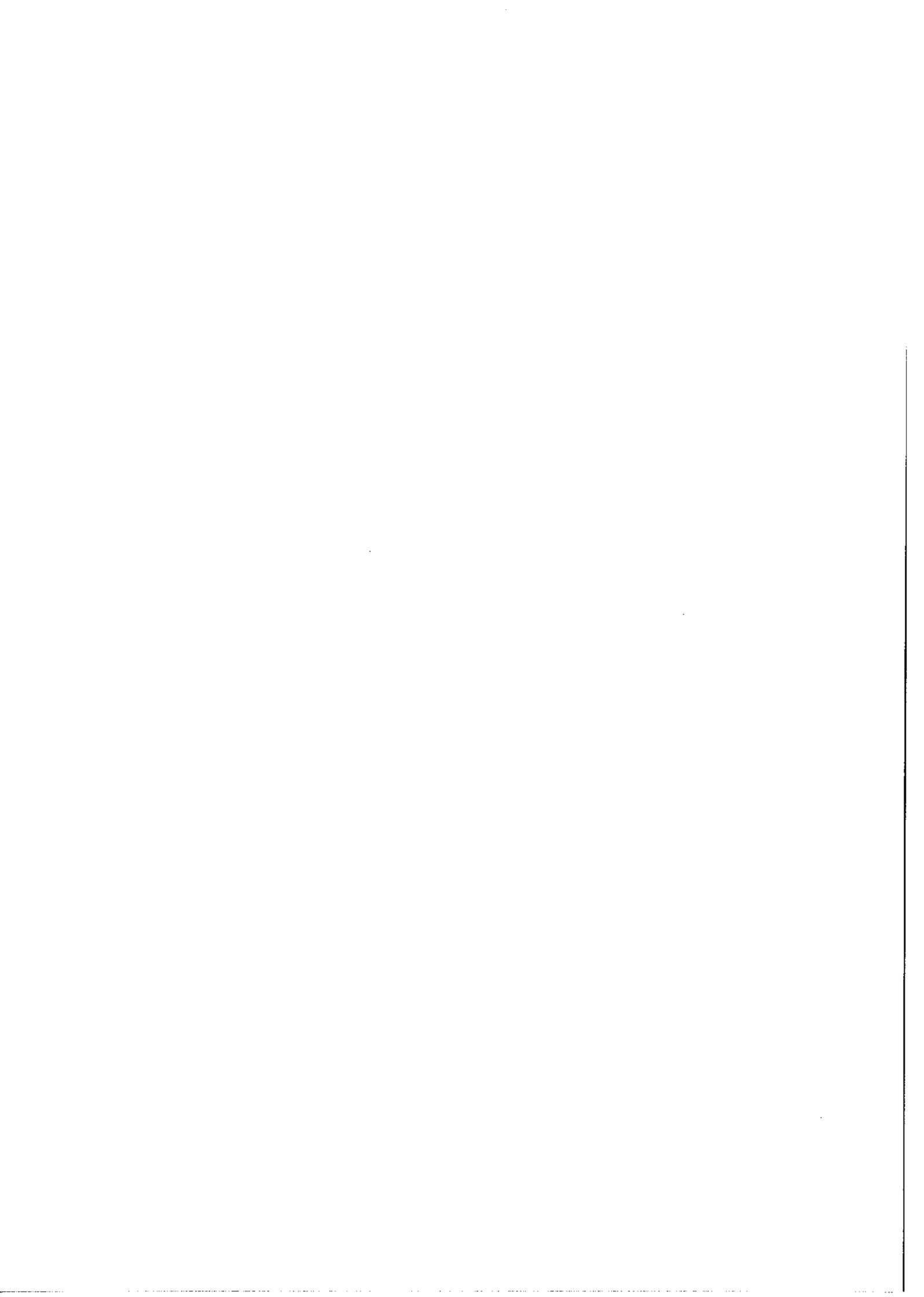
cette expérience la longueur active de la décharge était de 3 cm environ). Ce dispositif d'emploi problématique n'a été utilisé que dans les toutes premières expériences. Par la suite, pour augmenter la densité d'énergie dans la cuve, nous avons préféré y concentrer davantage le faisceau issu du laser seul. Ce procédé est simple mais a pour inconvénient de rendre le montage très sensible au moindre dérèglement optique.

La figure 23 montre le premier enregistrement obtenu avec le montage de la figure 21. Dans cette expérience préliminaire purement qualitative nous n'avons pas utilisé l'interféromètre multipassages. Nous avons enregistré le profil d'émission du laser après son double passage dans la cuve (signal I) et le signal après la détection

$$\frac{I - I_0}{I_0} \approx -\alpha(\omega_L) \times \ell.$$

Dans le profil du coefficient d'absorption le pic de résonance apparaît nettement alors qu'il est indiscernable dans le profil du laser, ce qui met en évidence le gain en rapport signal/bruit apporté par l'électronique. Les fluctuations importantes que l'on observe sur le profil laser sont dues essentiellement aux effets de la lumière de retour vers le laser : le piège à lumière n'est pas parfait et la faible fraction du faisceau saturant qui retourne vers la cavité (10^{-4} environ) suffit à perturber le fonctionnement de la source.

Ce premier résultat nous a incité à mettre au point un montage plus élaboré présenté dans le Chapitre III. Auparavant nous allons consacrer le chapitre suivant à l'étude de quelques aspects théoriques de la saturation de l'absorption.



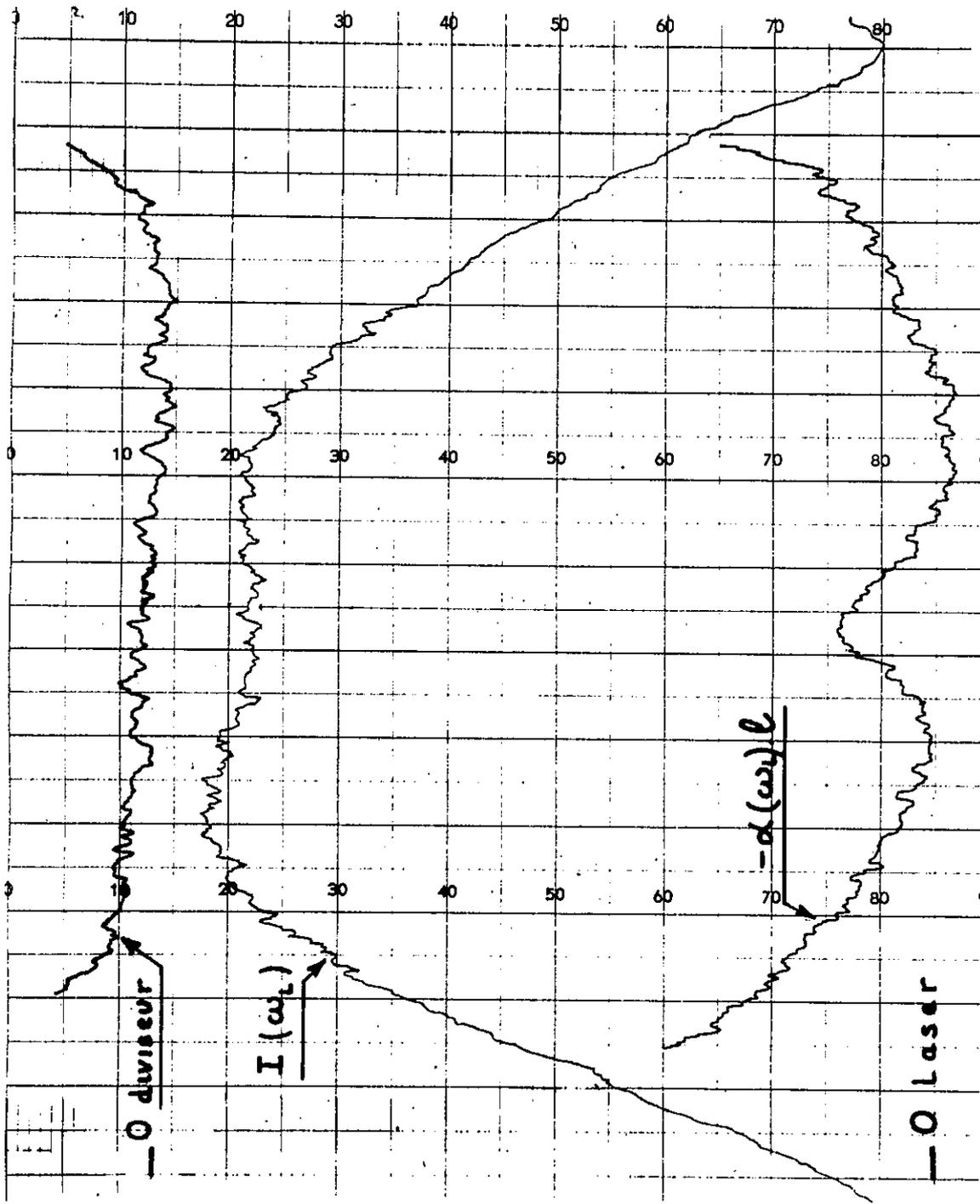
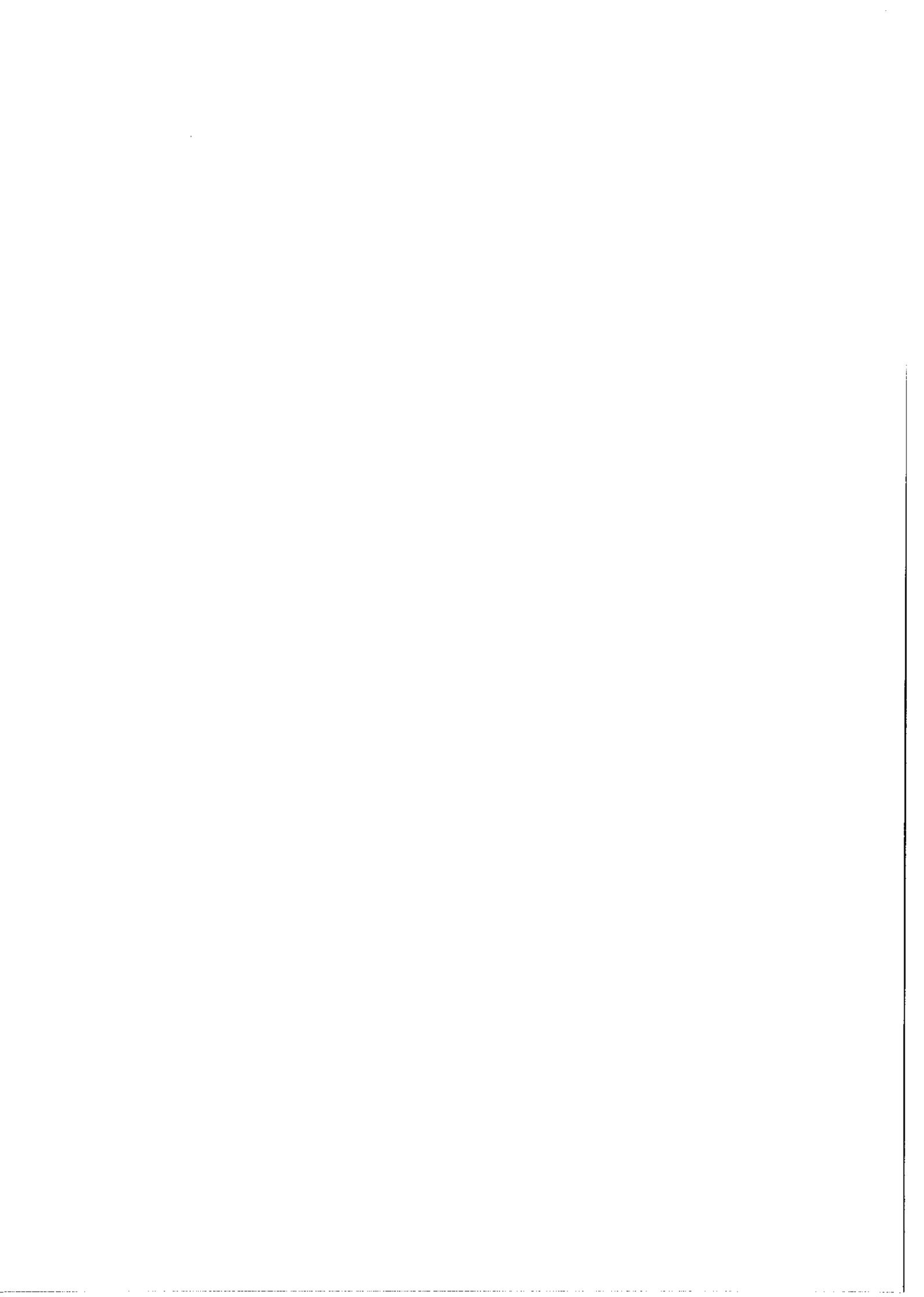


Figure 23

Première observation du pic d'absorption saturée sur la raie
 $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$.



CHAPITRE II

ASPECTS THEORIQUES DE L'ABSORPTION SATURÉE

Au cours de ces dernières années de nombreux auteurs ont développé des calculs relatifs à l'absorption saturée aussi bien dans le cas où l'absorbant est à l'extérieur de la cavité laser que dans le cas d'une cellule placée dans la cavité. Les techniques utilisées sont, en général, celles déjà appliquées dans la théorie des lasers à haute intensité. Elles constituent une extension des premiers calculs théoriques sur l'émission laser effectués par Lamb en 1964.

Dans ce chapitre sont d'abord présentés des calculs relatifs à la forme et à l'amplitude du Lamb-dip inversé dans le cas le plus simple : l'absorbant est un système à deux niveaux non dégénérés et la saturation est analysée par un faisceau sonde d'intensité très faible (cuve à absorption hors cavité). Le cas d'une transition présentant une structure est ensuite exposé et je me suis particulièrement intéressé au problème des intensités relatives des différentes composantes de la structure. Ce point n'avait pas été abordé jusqu'à présent par les différents auteurs dont les préoccupations sont, dans beaucoup de cas, assez éloignées de celles des spectroscopistes.

Dans tous les calculs qui vont suivre l'amplitude des champs électromagnétiques est constante. Nous supposons que les résultats obtenus dans cette hypothèse sont extrapolables à nos expériences bien qu'on y utilise des impulsions. La justification de cette hypothèse sera discutée au Chapitre IV. Enfin nous nous plaçons ici dans le cas semi-quantique pour lequel le rayonnement est traité classiquement alors que le système atomique est considéré du point de vue quantique.

A. SATURATION DE L'ABSORPTION POUR UNE TRANSITION SANS
STRUCTURE - SYSTEME A DEUX NIVEAUX.

1. CALCUL ELEMENTAIRE - MODIFICATION DE LA POPULATION DES NIVEAUX

Soient a et b les niveaux (non dégénérés) supérieur et inférieur respectivement d'une transition de fréquence ω_0 . On désigne par γ_α ($\alpha=a,b$) la probabilité par unité de temps de désexcitation du niveau ⁽¹⁾ et par $\lambda_\alpha(v)$ le nombre d'atomes par unité de temps et de volume qui, après un processus quelconque d'excitation, viennent peupler le niveau α avec la vitesse longitudinale v (composante de la vitesse suivant la direction du champ, z par exemple - figure 24).

(1) A pression nulle $\gamma_\alpha = \frac{1}{\tau_\alpha}$ où τ_α est la durée de vie du niveau α . Pour une pression différente γ_α contient aussi un terme dû aux collisions : $\gamma_\alpha = \frac{1}{\tau_\alpha} + \gamma_{\alpha \text{ coll}}$. (collisions inélastiques en particulier ; le problème plus délicat des collisions élastiques modifiant la vitesse sera évoqué au Chapitre IV).

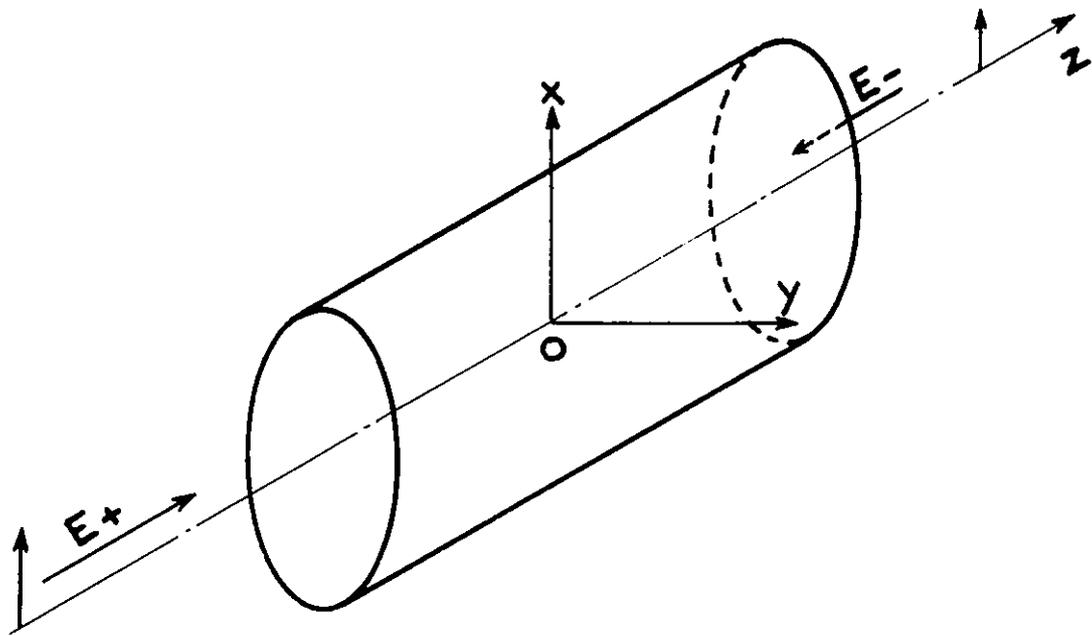
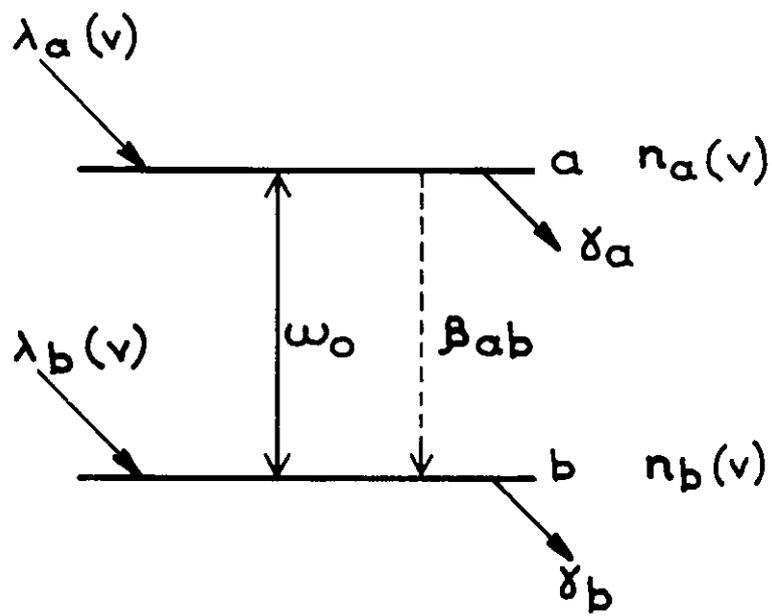
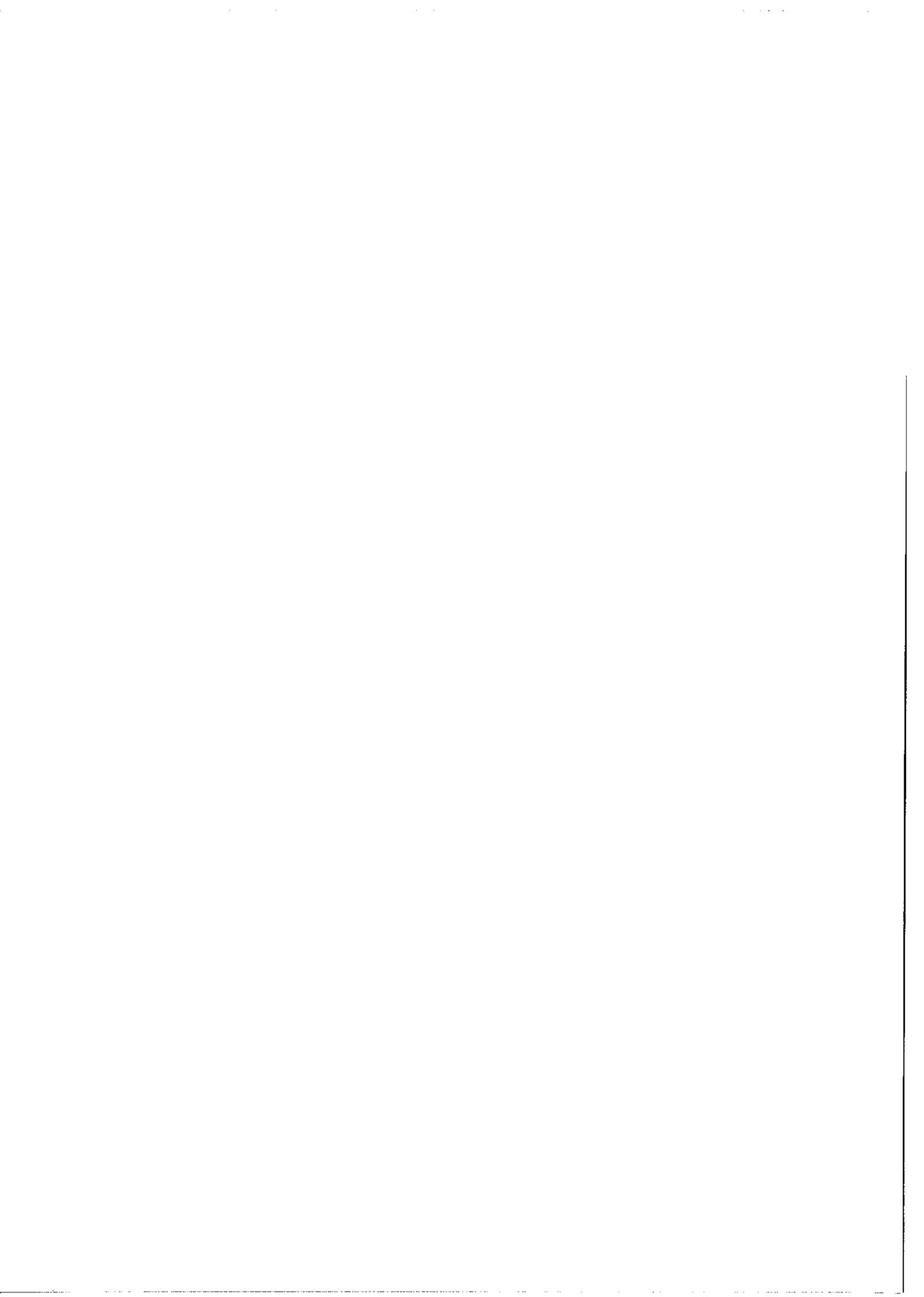


Figure 24



La dépendance en v des termes d'excitation est supposée maxwellienne :

$$\lambda_{\alpha}(v) = \lambda_{\alpha} \times f(v) \quad \text{où} \quad f(v) = \frac{1}{\sqrt{\pi}v_0} e^{-\left(\frac{v}{v_0}\right)^2}$$

$$v_0 \text{ est la vitesse la plus probable : } \quad v_0 = \sqrt{\frac{2k_B T}{m}}$$

(k_B est la constante de Boltzmann, T est la température absolue du milieu et m est la masse de l'atome). Les coefficients γ_{α} et λ_{α} sont supposés indépendants des coordonnées d'espace et de temps. Enfin $n_{\alpha}(v)$ est la densité de population, pour la classe de vitesse v , du niveau α .

Le milieu est soumis à un champ électromagnétique qui est la superposition d'une onde saturante de fréquence ω et d'une onde sonde de fréquence ω' se propageant en sens opposé. Les deux ondes sont supposées planes et de polarisations rectilignes parallèles. On écrit le champ résultant :

$$E(z,t) = E_+ \cos(\omega t - kz) + E_- \cos(\omega' t + k' z)$$

E_+ , E_- sont les amplitudes du champ saturant et du champ sonde respectivement ; k et k' sont les vecteurs d'onde. Nous supposons que

$$\frac{E_-}{E_+} \ll 1$$

de telle sorte qu'on puisse négliger tout effet de saturation par le champ sonde. Nous supposons ici E_{\pm} indépendants de z c'est-à-dire le milieu très faiblement absorbant.

Nous désignons par $W_{\pm}(v)$ la probabilité par unité de temps pour qu'un atome de vitesse v subisse une transition $a \leftrightarrow b$ induite par

l'un des champs, saturant (signe +) ou sonde (signe -). En posant

$$\Omega = \omega_0 - \omega \quad \text{et} \quad \Omega' = \omega_0 - \omega' \quad \text{on a :}$$

$$W_+(v) = \frac{\mathcal{P}^2 E^2}{2\pi^2} \cdot \frac{\gamma_{ab}}{\gamma_{ab}^2 + (\Omega + kv)^2} \quad \text{et} \quad W_-(v) = \frac{\mathcal{P}^2 E^2}{2\pi^2} \cdot \frac{\gamma_{ab}}{\gamma_{ab}^2 + (\Omega' - kv)^2}$$

Dans ces expressions γ_{ab} est la demi-largeur homogène de la transition (demi-largeur naturelle augmentée des effets des collisions ($\gamma_{ab} \geq \frac{1}{2} (\frac{1}{\tau_a} + \frac{1}{\tau_b})$; égalité à pression nulle seulement) et \mathcal{P} est la projection suivant la direction commune de polarisation des champs de l'élément de matrice du moment dipolaire électrique de la transition. Le terme de Lorentz exprime simplement que l'énergie du rayonnement se répartit suivant la largeur homogène de la transition. Enfin nous désignons par β_{ab} la probabilité par unité de temps d'émission spontanée d'un atome de a vers b, supposée indépendante de la vitesse.

Dans les conditions que nous venons de définir, lorsque le milieu est soumis à l'action du champ saturant seul, les équations donnant les populations sont, en régime permanent :

$$\lambda_a(v) - n_a(v) \gamma_a - W_+(v)[n_a(v) - n_b(v)] = 0$$

$$\lambda_b(v) - n_b(v) \gamma_b + W_+(v)[n_a(v) - n_b(v)] + \beta_{ab} n_a(v) = 0$$

D'où l'on déduit aisément :

$$\Delta n_{ab}(v) = n_a(v) - n_b(v) = \frac{\Delta n_{ab0}(v)}{1 + \frac{W_+(v)}{\gamma}}$$

expression dans laquelle

$$\Delta n_{ab0}(v) = \frac{\lambda_a(v)}{\gamma_a} \left(1 - \frac{\beta_{ab}}{\gamma_b}\right) - \frac{\lambda_b(v)}{\gamma_b} \quad \text{est la différence des populations}$$

en l'absence du champ.

$$\Delta n_{ab0}(v) = N_0 f(v) \quad \text{avec} \quad N_0 = \frac{\lambda_a}{\gamma_a} \left(1 - \frac{\beta_{ab}}{\gamma_b}\right) - \frac{\lambda_b}{\gamma_b}$$

et
$$\frac{z}{\gamma} = \frac{1}{\gamma_a} - \frac{1}{\gamma_b} - \frac{\beta_{ab}}{\gamma_a \gamma_b}$$

Compte tenu de l'expression de $W_+(v)$, $\Delta n_{ab}(v)$ s'écrit aussi :

$$\Delta n_{ab}(v) = \Delta n_{ab0}(v) \left[1 - \frac{\chi \gamma_{ab}^2}{\gamma_{ab}^2 (1+\chi) + (\Omega + kv)^2} \right] \quad (1)$$

On introduit le paramètre de saturation :

$$\chi = \frac{\mathcal{G}^2 E_+^2}{\pi^2 \gamma \gamma_{ab}} \quad (\text{quantité sans dimension})$$

La relation (1) met en évidence la perturbation due au champ saturant. Elle se présente sous la forme d'un trou à profil de Lorentz centré sur la vitesse longitudinale $v = -\frac{\Omega}{k}$. Son amplitude relative est $\frac{\chi}{1+\chi}$ et sa largeur à mi-hauteur est $2\gamma_{ab} \sqrt{1+\chi}$. Ainsi son amplitude n'est proportionnelle à l'intensité du champ que pour les faibles valeurs de celui-ci. Lorsque l'intensité croît il apparaît le phénomène de saturation : il y a ralentissement dans l'accroissement de l'amplitude et élargissement du profil qui reste néanmoins lorentzien (du moins dans ce modèle simplifié).

Supposons maintenant qu'on analyse le profil d'absorption de la transition soumise au champ saturant avec le champ sonde de fréquence ω' variable. La puissance absorbée sur le champ sonde par unité de volume et de vitesse est, pour les atomes de vitesse v :

$$P_{-}(v, \Omega, \Omega', \chi) = -h \frac{\omega'}{2\pi} \Delta n_{ab}(v) W_{-}(v)$$

(on suppose $\Delta n_{ab}(v) < 0$).

Compte tenu de (1) et de l'expression donnant $W_{-}(v)$ on en déduit la puissance totale absorbée par l'ensemble des atomes par unité de volume:

$$P_{-}(\Omega, \Omega', \chi) = -h \frac{\omega'}{2\pi} N_0 \frac{\mathcal{G}^2 E^2}{2\pi^2} \int_{-\infty}^{+\infty} f(v) \left[1 - \frac{\chi \gamma_{ab}^2}{\gamma_{ab}^2 (1+\chi) + (\Omega+kv)^2} \right] \times \frac{\gamma_{ab}}{\gamma_{ab}^2 + (\Omega'-k'v)^2} dv$$

Cette expression ne peut se calculer analytiquement que si on suppose la largeur Doppler très supérieure à la largeur homogène augmentée des effets de saturation, c'est-à-dire si :

$$k'v_0 \neq kv_0 \gg \gamma_{ab} \sqrt{1+\chi} .$$

Dans ce cas on peut extraire la fonction $f(v)$ de l'intégrale en prenant sa valeur au point $v = \frac{\Omega'}{k'}$. En effet la partie Lorentzienne de l'intégrand prend une valeur non négligeable seulement dans la région où $v \neq \frac{\Omega'}{k'}$. On a donc puisque $k \neq k' \neq \frac{\omega_0}{c}$:

$$P_{-}(\Omega, \Omega', \chi) = -h \frac{\omega'}{2\pi \frac{3}{2}} N_0 \frac{\mathcal{G}^2 E^2}{2\pi^2 v_0} e^{-\left(\frac{\Omega'}{\omega_d}\right)^2} \left\{ \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\gamma_{ab} dv}{\gamma_{ab}^2 + (\Omega'-kv)^2} - \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\chi \gamma_{ab}^3 dv}{[\gamma_{ab}^2 + (\Omega'-kv)^2][\gamma_{ab}^2 (1+\chi) + (\Omega+kv)^2]} \right\}$$

avec $kv_0 \neq \omega_d$, demi-largeur Doppler à $\frac{1}{e}$ du maximum.

Le calcul de la première intégrale est évident. Dans l'intégrand de

la seconde on reconnaît un produit de convolution (l'intégration directe s'effectue par la méthode des résidus). On trouve finalement :

$$\frac{P_{-}(\Omega, \Omega', \chi)}{P_{-}(0, 0)} = \left[1 - \frac{\chi}{1+\chi+\sqrt{1+\chi}} \mathcal{L}(\Gamma, \Omega + \Omega') \right] e^{-\left(\frac{\Omega'}{\omega_d}\right)^2} \quad (2)$$

où $\Gamma = \gamma_{ab}(1 + \sqrt{1+\chi})$

$$\mathcal{L}(\Gamma, \Omega + \Omega') = \frac{\Gamma^2}{\Gamma^2 + (\Omega + \Omega')^2}$$

et $P_{-}(0, 0)$ est la puissance absorbée au centre du profil en l'absence du champ saturant.

Notons que le rapport (2) est aussi $\frac{\alpha(\Omega, \Omega', \chi)}{\alpha(0, 0)}$ rapport du coefficient d'absorption pour le champ saturant au coefficient d'absorption pour le champ sonde seul au centre du profil.

La relation (2) montre que pour Ω donné, loin de la région où $\Omega' \neq -\Omega$ le profil d'absorption est le profil normal obtenu en champ faible avec l'effet Doppler dominant. Dans la région $\Omega' \neq -\Omega$ apparaît une diminution du coefficient d'absorption dont l'amplitude relative est donnée par $\frac{\chi}{1+\chi+\sqrt{1+\chi}}$ et dont la largeur à mi-hauteur, $2\gamma_{ab}(1 + \sqrt{1+\chi})$ provient de ce que l'on explore le profil $\Delta n_{ab}(v)$ de largeur $2\gamma_{ab}\sqrt{1+\chi}$ avec la fonction d'appareil $W_{-}(v)$ de largeur $2\gamma_{ab}$. La perturbation est encore à profil de Lorentz.

Dans le cas particulier correspondant à notre montage expérimental le faisceau sonde a même fréquence ω que le faisceau saturant. Le calcul précédent avec $\Omega' = \Omega$ donne alors :

$$\frac{\alpha(\Omega, \chi)}{\alpha(0, 0)} = \left[1 - \frac{\chi}{1+\chi+\sqrt{1+\chi}} \mathcal{L}\left(\frac{\Gamma}{2}, \Omega\right) \right] e^{-\left(\frac{\Omega}{\omega_d}\right)^2} \quad (3)$$

$$\text{avec } \mathcal{L}\left(\frac{\Gamma}{2}, \Omega\right) = \frac{\left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2}{\left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2 + \Omega^2}$$

Cette fois la perturbation a lieu pour $\Omega = 0$ c'est-à-dire au centre du profil d'absorption et sa largeur est $\frac{\Gamma}{2}$ au lieu de Γ , résultat dû au balayage simultané du profil par le faisceau sonde et le faisceau saturant (Chap. I).

L'ensemble des résultats précédents appelle les remarques suivantes :

- Nous avons défini le paramètre de saturation par $\chi = \frac{\mathcal{P}^2 E^2}{\hbar^2 \gamma \gamma_{ab}}$

en posant $\chi_0 = \frac{\mathcal{P}^2 E^2}{2\hbar^2 \gamma_{ab}} \left(\frac{1}{\gamma_a} + \frac{1}{\gamma_b} \right)$ et en tenant compte de l'expression

de γ on a :

$$\chi = \chi_0 \left(1 - \frac{\beta_{ab}}{\gamma_a + \gamma_b} \right)$$

χ_0 est donc le paramètre de saturation obtenu en négligeant l'effet de l'émission spontanée. Dans le cas particulier de la transition que nous étudions nous avons vu que la plupart des atomes du niveau résonnant (99% environ) retournent vers le fondamental. Ainsi γ_a qui représente la probabilité totale d'émission spontanée à partir du niveau supérieur, augmentée des effets des chocs, est à lui seul bien supérieur à β_{ab} ($\frac{\beta_{ab}}{\gamma_a} < 10^{-2}$) donc a fortiori $\frac{\beta_{ab}}{\gamma_a + \gamma_b} \ll 1$ et pour cette transition on peut négliger l'effet de l'émission spontanée qui contribue seulement à une très légère diminution de la saturation.

- Des relations (1) et (3) on déduit :

$$\alpha(0, 0, \chi) = \alpha(0, \chi) = \frac{\alpha(0, 0)}{\sqrt{1+\chi}} .$$

Au centre du profil, le coefficient d'absorption pour l'onde sonde est égal au coefficient pour l'onde saturante seule. Si la saturation devient très grande ($\chi \rightarrow \infty$) le coefficient d'absorption tend vers zéro: le milieu devient complètement transparent.

Le calcul simple que nous venons d'exposer ne décrit correctement les phénomènes que dans la mesure où on peut négliger les effets de cohérence. Une description plus exacte du couplage atomes-champs qui tient compte de ces effets et que nous allons maintenant présenter, donne des résultats quelque peu différents notamment lorsque la saturation est élevée.

2. CALCUL TENANT COMPTE DES RELATIONS DE PHASE ENTRE LES DIPOLES ATOMIQUES.

Nous allons nous placer dans les mêmes hypothèses que pour le paragraphe précédent : le milieu faiblement absorbant possède deux niveaux non dégénérés et il est soumis à un champ saturant polarisé rectilignement. La saturation est analysée par un champ sonde de même polarisation, d'intensité très faible et se propageant en sens opposé. Nous supposons encore que la largeur Doppler de la transition est très supérieure à toutes les largeurs homogènes. Enfin, puisque cela correspond à nos conditions expérimentales, nous négligeons l'émission spontanée et nous nous plaçons dans le cas où les deux champs ont la même fréquence ω .

L'état d'un atome oscillant entre les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ est représenté par la fonction :

$$\Psi(t) = a(t) |a\rangle + b(t) |b\rangle$$

ou bien, en terme de matrice densité, par la matrice hermitique 2x2 :

$$\rho = \begin{pmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ab} \\ \rho_{ba} & \rho_{bb} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} aa^* & ab^* \\ ba^* & bb^* \end{pmatrix}$$

L'hamiltonien du système est $H = H_0 + V$ où H_0 est l'hamiltonien du système non perturbé

$$H_0 = \hbar \begin{pmatrix} \omega_a & 0 \\ 0 & \omega_b \end{pmatrix} \quad \text{avec} \quad \omega_0 = \omega_a - \omega_b$$

V est l'hamiltonien perturbateur ; il s'écrit, avec les notations du paragraphe précédent :

$$V(z, t) = -\mathcal{P} E(z, t) \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}$$

Le système obéit à l'équation d'évolution

$$\dot{\rho} = -\frac{i}{\hbar} [H, \rho] + \dot{\rho}_{\text{excitation}} + \dot{\rho}_{\text{relaxation}} \quad (4)$$

Dans l'hypothèse d'une excitation spatialement isotrope, la matrice excitation est diagonale [56] :

$$\dot{\rho}_{\text{excitation}} = \begin{pmatrix} \lambda_a(\nu) & 0 \\ 0 & \lambda_b(\nu) \end{pmatrix}$$

De plus, à basse pression, domaine où les effets des collisions sont faibles, la matrice relaxation s'écrit [56] :

$$\dot{\rho}_{\text{relaxation}} = -\frac{1}{2} \{\Gamma, \rho\} \quad \text{où} \quad \Gamma = \begin{pmatrix} \gamma_a & 0 \\ 0 & \gamma_b \end{pmatrix}$$

$$\text{et} \quad \gamma_{ab} \neq \frac{1}{2} (\gamma_a + \gamma_b)$$

alors l'équation d'évolution (4) revient à résoudre le système d'équations (1) :

$$\text{I} \left\{ \begin{array}{l}
 \dot{\rho}_{aa} = \lambda_a(v) - \gamma_a \rho_{aa} - i \frac{\mathcal{P}_E^+}{2\hbar} [\rho_{ab} e^{i(\omega t - kz)} - \rho_{ba} e^{-i(\omega t - kz)}] \\
 \quad - i \frac{\mathcal{P}_E^-}{2\hbar} [\rho_{ab} e^{i(\omega t + kz)} - \rho_{ba} e^{-i(\omega t + kz)}] \\
 \dot{\rho}_{bb} = \lambda_b(v) - \gamma_b \rho_{bb} + i \frac{\mathcal{P}_E^+}{2\hbar} [\rho_{ab} e^{i(\omega t - kz)} - \rho_{ba} e^{-i(\omega t - kz)}] \\
 \quad + i \frac{\mathcal{P}_E^-}{2\hbar} [\rho_{ab} e^{i(\omega t + kz)} - \rho_{ba} e^{-i(\omega t + kz)}] \\
 \dot{\rho}_{ab} = -(\gamma_{ab} + i \omega_0) \rho_{ab} - i \frac{\mathcal{P}_E^+}{2\hbar} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) e^{-i(\omega t - kz)} \\
 \quad - i \frac{\mathcal{P}_E^-}{2\hbar} (\rho_{aa} - \rho_{bb}) e^{-i(\omega t + kz)}
 \end{array} \right.$$

$$\text{où } \dot{\rho} = \left(\frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial z} \right) \rho$$

Ce système est obtenu dans l'hypothèse où l'on peut faire l'approximation des "ondes tournantes" ce qui se justifie ici puisque $\omega \neq \omega_0$.

Je ne détaillerai pas ici la résolution du système (I). Celle-ci a été présentée de façon très complète par Baklanov et Chebotaev [57] et indépendamment par Haroche et Hartmann [58]. Je vais exposer seulement les principales étapes des calculs et analyser les résultats nouveaux obtenus par ces auteurs par rapport au calcul élémentaire du paragraphe précédent.

(1) Pour alléger l'écriture, les éléments de la matrice densité sont notés simplement ρ_{ij} bien que dépendants a priori de v , z et t .

Le système (I) est d'abord résolu rigoureusement pour un champ saturant seul ($E_- = 0$) en cherchant des solutions en régime stationnaire de la forme :

$$\rho_{\alpha\alpha} = \rho_{\alpha\alpha}^{(0)}(\nu) \quad \alpha = a, b$$

$$\rho_{ab} = \rho_{ab}^{(0)}(\nu) e^{-i(\omega t - kz)}$$

On obtient :

$$\rho_{aa}^{(0)}(\nu) - \rho_{bb}^{(0)}(\nu) = \Delta n_{ab0}(\nu) \left[1 - \frac{\chi \gamma_{ab}^2}{\gamma_{ab}^2 (1+\chi) + (\Omega + k\nu)^2} \right]$$

Cette expression représente la différence de population en présence du champ saturant. Elle est identique à celle obtenue au paragraphe précédent et, comme elle, elle est valable quelle que soit l'intensité du champ saturant (aucune hypothèse sur la valeur de χ).

Pour les éléments non diagonaux on obtient :

$$\rho_{ab}^{(0)}(\nu) = \frac{-i\mathcal{Q}E}{2\pi} \Delta n_{ab0}(\nu) \frac{\gamma_{ab} - i(\Omega + k\nu)}{\gamma_{ab}^2 (1+\chi) + (\Omega + k\nu)^2}$$

Il est tenu compte ensuite de l'influence du champ sonde, supposé d'intensité faible, en l'introduisant dans (I) sous forme d'une perturbation. On développe ρ en puissances successives de E_- :

$$\rho = \rho^{(0)} + E_- \rho^{(1)} + E_-^2 \rho^{(2)} + \dots$$

En remplaçant dans le système (I) on obtient un système d'équations récurrentes liant $\rho^{(p)}$ à $\rho^{(p-1)}$ et compte tenu des résultats obtenus à l'ordre $p=0$ on peut en principe calculer $\rho^{(p)}$ à n'importe quel ordre. C'est la méthode utilisée par Baklanov et Chebotaev qui se sont limité à l'ordre $p=1$ (réponse linéaire en E_-). En fait

dès l'ordre $p=2$ les calculs se compliquent sérieusement. Haroche et Hartmann ont montré qu'ils se simplifient en recherchant a priori des solutions de la forme :

$$\rho_{\alpha\alpha}^{(p)} = \sum_n \rho_{\alpha\alpha_n}^{(p)}(v) e^{2inkz} \quad \alpha = a, b$$

$$\rho_{ab}^{(p)} = \sum_n \rho_{ab_n}^{(p)}(v) e^{2inkz} e^{-i(\omega t - kz)}$$

En remplaçant dans le système (I) on obtient un système d'équations algébriques reliant les coefficients de Fourier $\rho_{\alpha\alpha_n}^{(p)}$, $\rho_{ab_n}^{(p)}$. Par cette méthode Haroche et Hartmann ont explicité les calculs jusqu'à l'ordre $p=2$ (réponse quadratique du milieu au champ sonde). Nous nous intéressons ici à l'ordre $p=1$ approximation suffisante pour nos expériences. La puissance absorbée sur le champ sonde se calcule à partir de la relation :

$$P_-(\Omega, \chi) = \int_{-\infty}^{+\infty} \langle E_-(z, t) \frac{d}{dt} \mathcal{P}_-(z, t, v) \rangle_{\text{temps}} dv$$

dans laquelle $\mathcal{P}_-(z, t, v)$ est la composante de la polarisation au milieu qui a la même dépendance en t et z que le champ sonde. Dans l'approximation de l'ordre $p=1$ on a :

$$P_-(\Omega, \chi) = \int_{-\infty}^{+\infty} \omega \mathcal{P}_-^2 E_-^2 \text{Im. } \rho_{ab_{-1}}^{(1)}(v) dv \quad \text{soit}$$

$$P_-(\Omega, \chi) = - \frac{\omega \mathcal{P}_-^2 E_-^2}{2\pi \gamma_{ab}} N_0 \int_{-\infty}^{+\infty} f(v) \left[1 - \frac{\chi \gamma_{ab}^2}{\gamma_{ab}^2 (1+\chi) + (\Omega + kv)^2} \right] \frac{\gamma_{ab}^2}{\gamma_{ab}^2 + (\Omega - kv)^2} \times \left[1 - \chi \text{Re.} B(v, \Omega, \chi) \right] dv \quad (5)$$

Le coefficient ainsi que les trois premiers facteurs de l'intégrant

sont identiques à ceux obtenus dans le premier paragraphe. Le dernier terme, que nous n'explicitons pas ici, traduit seul les effets de cohérence. Dans l'hypothèse d'une largeur homogène très petite devant la largeur Doppler, Baklanov et Chébotaev [57] ont calculé explicitement le coefficient d'absorption $\alpha'(\Omega, \chi)$ pour l'onde sonde en présence du champ saturant, compte tenu des termes de cohérence :

$$\frac{\alpha'(\Omega, \chi)}{\alpha(0,0)} = \frac{\alpha(\Omega, \chi)}{\alpha(0,0)} + \frac{\gamma}{\gamma_{ab}} \chi \xi(\Omega, \chi) \quad (6)$$

Le premier terme est identique à celui donné par le calcul élémentaire sur les populations. Dans le second terme, dû aux effets de cohérence, la fonction $\xi(\Omega, \chi)$ a une forme assez compliquée qu'il est inutile d'explicitier ici ; elle a été calculée complètement par Baklanov et Chebotaev [57]. Des résultats nouveaux apportés par les expressions (5) et (6) nous retiendrons les deux points suivants :

a) L'effet de la fonction $\xi(\Omega, \chi)$ est maximum au centre du profil ($\Omega=0$). Loin du centre son amplitude décroît comme $\frac{1}{\Omega^2}$ et devient vite négligeable. Son action essentielle est d'augmenter le coefficient d'absorption au voisinage du centre du profil, c'est-à-dire de diminuer la saturation. L'effet est particulièrement sensible pour les valeurs élevées de χ (pour $\chi \ll 1$, $\frac{\gamma}{\gamma_{ab}} \chi \xi(0, \chi) \approx \frac{\gamma}{\gamma_{ab}} \times \frac{\chi^2}{4} \times \frac{3}{(2 + \frac{\gamma_a}{\gamma_{ab}})(2 + \frac{\gamma_b}{\gamma_{ab}})}$). En particulier si $\chi \rightarrow \infty$ (ce qui n'a de sens

que si on suppose la largeur Doppler elle-même infinie) on a :

$$\lim_{\chi \rightarrow \infty} \frac{\alpha'(\Omega, \chi)}{\alpha(0,0)} = \frac{3}{2} \frac{\gamma/\gamma_{ab}}{3 + \gamma/\gamma_{ab}}$$

Ceci montre que, contrairement au résultat obtenu précédemment, le milieu ne se sature jamais complètement même à saturation très élevée.

L'importance du terme de cohérence, liée surtout à la valeur du coefficient $\frac{\gamma}{\gamma_{ab}} \chi$, dépend beaucoup, pour une saturation donnée, des valeurs relatives des constantes de relaxation des deux niveaux et des effets des collisions. Supposons d'abord les collisions négligeables, alors :

$$\gamma_{ab} \# \frac{1}{2} (\gamma_a + \gamma_b) \# \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\tau_a} + \frac{1}{\tau_b} \right)$$

$$\frac{\gamma}{\gamma_{ab}} \# \frac{4\gamma_a \gamma_b}{(\gamma_a + \gamma_b)^2}$$

Le rapport $\frac{\gamma}{\gamma_{ab}}$ est maximum et vaut 1 si $\gamma_a = \gamma_b$; si $\gamma_a \neq \gamma_b$ sa valeur est plus faible et dans le cas particulier où l'une des constantes est très petite devant l'autre, pour $\frac{\gamma_b}{\gamma_a} \ll 1$ par exemple, on a :

$$\frac{\gamma}{\gamma_{ab}} \# \frac{4\gamma_b}{\gamma_a} \ll 1$$

Ainsi on peut négliger les effets de cohérence dans ce cas même si $\chi \gg 1$. Cette situation correspond en particulier à celle de la transition $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$ du baryum pour laquelle $\tau_a \approx 8,4 \cdot 10^{-9}$ nsec. (niveau résonant) et $\tau_b \sim \infty$ en émission dipolaire électrique (niveau métastable) et pour laquelle, aux pressions correspondantes à nos conditions habituelles de travail, on a : $\gamma_{a \text{ coll.}} \ll \frac{1}{\tau_a}$.

Si les collisions ne sont plus négligeables on ne peut conclure quant à leur conséquence sur la valeur du rapport $\frac{\gamma}{\gamma_{ab}}$ (γ_{ab} augmente mais des effets différents sur les niveaux peuvent conduire à l'une ou

l'autre des situations $\gamma_a \neq \gamma_b$ ou γ_a très différent de γ_b). Cependant leurs effets vont toujours dans le sens d'une diminution du paramètre de saturation à intensité du champ donnée et on note que le facteur $\frac{\gamma}{\gamma_{ab}} \chi$, proportionnel à $\frac{1}{\gamma_{ab}^2}$ diminue si la largeur homogène augmente.

b) Nous avons jusqu'à présent supposé la largeur Doppler très grande devant la largeur homogène élargie par les effets de la saturation et nous venons de voir que dans ce cas les termes de cohérence conduisent, pour la région centrale du profil, à une absorption plus forte que dans le modèle simplifié où l'on ne tient compte que des modifications dans les populations. Dans le cas où la largeur Doppler est du même ordre de grandeur que la largeur homogène il est possible d'étudier numériquement la puissance absorbée $P_-(\Omega, \chi)$ donnée par la relation (5) pour différentes valeurs de χ . On montre alors que cette fois l'absorption est plus faible que celle donnée par le modèle simplifié et qu'elle peut même devenir négative (dans la région centrale du profil) si la saturation est assez forte sans toutefois dépasser une certaine valeur (la gamme des valeurs de χ pour laquelle l'effet est le plus important dépend des constantes de relaxation et du rapport $\frac{kv_0}{\gamma_{ab}}$). Ce phénomène, paradoxal puisqu'il apparaît en l'absence d'inversion de population, peut s'étudier par l'analyse des propriétés de l'intégrand de la relation (5) qui présente à un coefficient près la puissance absorbée sur le champ sonde, par les atomes de classe de vitesse v et par unité de vitesse : $P_-(v, \Omega, \chi)$. Sur la figure 25 est tracé en fonction de $x = \frac{kv}{\gamma}$ l'évolution de la fonction

$y(\chi, x) = \frac{P_-(v, \Omega, \chi)}{f(v)}$ qui prend la forme, dans le cas simple $\Omega=0$ et

$$\gamma_a = \gamma_b = \gamma = \gamma_{ab} :$$

$$y(\chi, x) = -\frac{\omega \mathcal{G}_E^2}{2\pi \gamma_{ab}} N_0 \left[\frac{1}{1+x^2} \right] \left[1 - \frac{\chi}{\chi+1+x^2} \right] \left[1 - \chi \frac{(1+7x^2)(\chi+1-3x^2) - 24x^2}{(1+4x^2)\{(\chi+1-3x^2)^2 + 16x^2\}} \right] \quad (1)$$

Cette figure montre que pour les valeurs croissantes de χ on passe progressivement d'un profil de Lorentz centré sur $x=0$ ($\chi \ll 1$: milieu non saturé) à un profil comportant un petit maximum au centre, deux maxima importants d'autant plus éloignés du centre que χ est élevé et enfin une petite zone intermédiaire négative : il y a amplification pour les atomes de vitesse longitudinale correspondante. On comprend alors que si la largeur Doppler est assez réduite pour que les deux maxima soient situés au-delà de cette largeur, la partie négative domine et $P_-(0, \chi) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(v) y(\chi, \frac{kv}{\gamma}) dv$ est négatif : il y a amplification du champ sonde. En fait ce phénomène est d'amplitude faible (un calcul sur un cas concret devrait tenir compte des valeurs réelles des constantes de relaxation et aussi de l'émission spontanée). Il n'a pas encore, à notre connaissance, été mis en évidence expérimentalement. Son interprétation physique peut être comprise, du moins qualitativement, par analogie avec certains résultats classiques d'expériences de spectroscopie des radiofréquences [58].

(1) La tabulation de cette fonction a été effectuée au laboratoire par Mme M. G. Schweighofer.

3. PROFIL EXPERIMENTAL DU COEFFICIENT D'ABSORPTION - CONDITIONS D'OBSERVATION.

Dans le calcul élémentaire sur les populations nous avons montré que l'effet de la saturation sur le coefficient d'absorption, que l'on peut caractériser par la quantité $\alpha(\Omega, \chi) - \alpha(\Omega, 0)$, est une perturbation à profil de Lorentz dans la mesure où la largeur Doppler peut être considérée comme infinie. Le calcul plus précis tenant compte des effets de cohérence montre que ce résultat n'est qu'approximatif : la fonction $\xi(\Omega, \chi)$ modifie le profil et l'amplitude du signal. Suivant les conditions expérimentales d'autres causes de modifications dans l'amplitude, dans la largeur ou dans la forme apparaissent. En effet, le signal de saturation à observer apparaît comme une perturbation faible dans l'intensité, elle-même supposée faible, du champ sonde. Ces conditions sont très défavorables à un bon rapport Signal/bruit. Pour l'augmenter sans accroître beaucoup la saturation (ce qui conduit à un élargissement gênant et augmente les effets des termes de cohérence) on peut être amené à augmenter l'amplitude du faisceau sonde ou bien l'épaisseur optique $\alpha(0, 0)\ell$ (ℓ : longueur de la cuve d'absorption).

- Lorsque l'amplitude du faisceau sonde n'est plus négligeable devant celle du champ saturant il produit lui-même une saturation du milieu : la largeur du pic de résonance augmente et loin du centre du profil ($\frac{\Omega}{\gamma_{ab}} \gg 1$) le coefficient d'absorption n'est plus $\alpha(\Omega, \chi) \neq \alpha(\Omega, 0)$ mais $\alpha_{\chi'}(\Omega, \chi) \neq \frac{\alpha(\Omega, 0)}{\sqrt{1+\chi'}}$ où χ' est le paramètre de saturation associé au champ sonde. Le contraste relatif que l'on peut

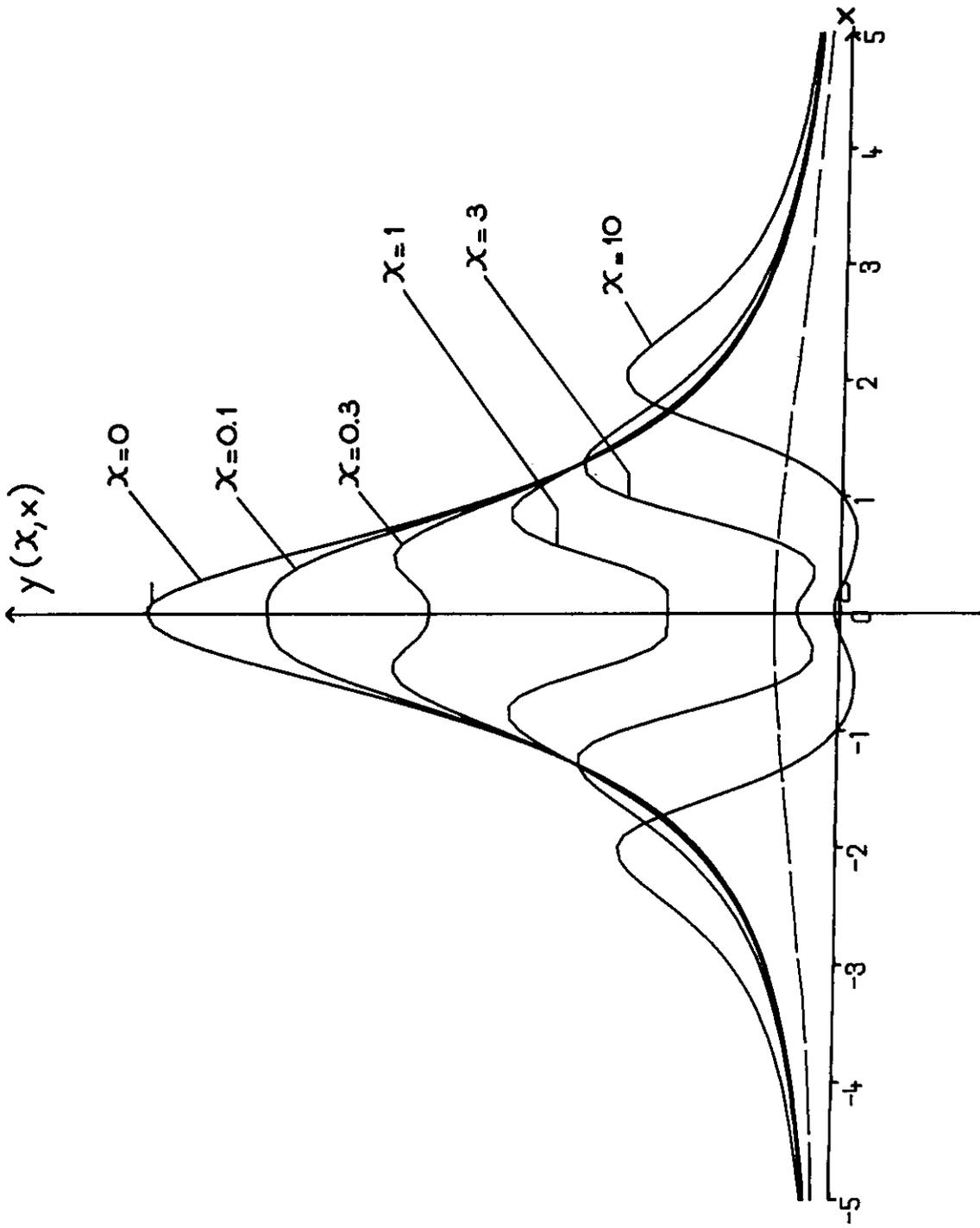
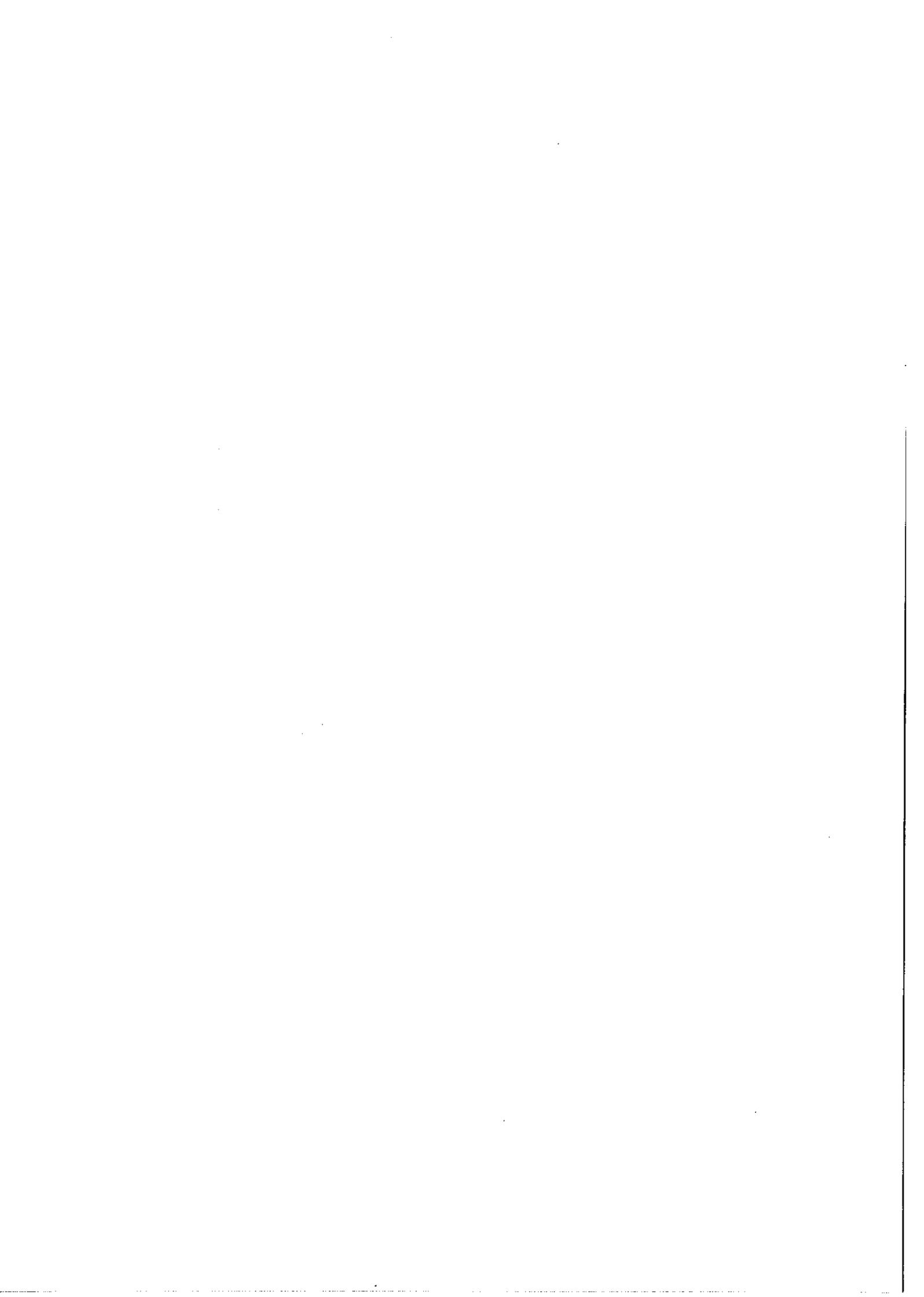


Figure 25



définir au centre du profil par

$$C_R = \frac{\alpha_{\chi'}(0,0) - \alpha_{\chi'}(0,\chi)}{\alpha(0,0)}$$

et qui vaut $1 - \frac{1}{\sqrt{1+\chi}}$ pour $\chi'=0$, diminue et n'est plus que $\frac{1}{\sqrt{1+\chi'}} - \frac{1}{\sqrt{1+\chi+\chi'}}$ si on néglige les termes de cohérence (Fig. 26).

Baklanov et Chebotaev ont étudié ce cas en détails ainsi que la situation limite $\chi'=\chi$ [59,60].

- Si le milieu absorbant est d'épaisseur optique $\alpha(0,0)l$ non négligeable on ne peut plus supposer, comme nous l'avons fait jusqu'à présent, que l'amplitude des champs est constante au cours de la propagation dans la cuve d'absorption. Ainsi l'amplitude du champ saturant obéit à l'équation :

$$\frac{d E_+^2(z)}{dz} = - \frac{\alpha(\Omega,0)}{\sqrt{1+\chi(E_+^2)}} E_+^2(z)$$

Ceci revient à dire que le paramètre de saturation, donc le coefficient d'absorption, dépend de z et il en est de même pour l'amplitude du champ sonde E_- . La transmission pour l'onde sonde est donnée par :

$$\eta_-(\Omega,\chi) = \frac{E_-^2(l)}{E_-^2(0)} = e^{-\int_0^l \alpha(\Omega,\chi,z) dz}$$

En général les calculs ne sont pas solubles analytiquement. Basov et coll. puis Shirley [61,62] ont étudié numériquement l'effet d'une épaisseur optique importante sur le profil du coefficient d'absorption saturée. De cette étude il résulte essentiellement que l'effet n'est sensible que pour des absorptions très fortes ($\eta_-(\Omega,\chi) \lesssim 0,5$). Il

se traduit alors, pour une saturation donnée, par une largeur du pic de saturation plus faible que celle observée en épaisseur optique mince ($\eta_-(\Omega, \chi) \neq 1$). Ceci s'explique par l'atténuation importante subie par le faisceau de saturation au cours de sa propagation dans la cuve. Par ailleurs, en absorption forte, le contraste, défini cette fois à partir de la transmission pour le faisceau sonde, diffère de celui observé en absorption faible : lorsque l'épaisseur optique croît, le signal de saturation (différence entre l'intensité transmise pour le faisceau sonde, seul puis en présence du faisceau saturant) en général augmente d'abord, puis décroît ; l'épaisseur optique correspondant au maximum dépend de la saturation initiale à l'entrée de la cuve [61,62]. Le signal de saturation rapporté à l'intensité transmise en l'absence du faisceau saturant croît avec l'épaisseur optique [62].

Des deux possibilités pour augmenter le rapport Signal/bruit à saturation donnée la seconde semble donc la meilleure. En fait expérimentalement, pour accroître $\alpha_0 \ell$ on est amené soit à augmenter la pression dans la cuve (pression de vapeur de baryum dans notre cas) ou l'intensité du courant de décharge (augmentation de α_0) soit à augmenter la longueur de la cuve (ℓ). Dans le premier cas les effets des collisions deviennent vite gênants car ils provoquent un élargissement du pic de résonance et parfois une déformation de son profil (c'est le cas notamment des collisions conduisant à une diffusion des vitesses. Voir Chapitre IV). L'augmentation de ℓ est a priori préférable mais elle est limitée par l'impossibilité de rendre parallèle un faisceau gaussien. En définitive le choix du degré de saturation, de l'intensité du faisceau sonde et de l'épaisseur optique est un compromis, particulier à chaque expérience.

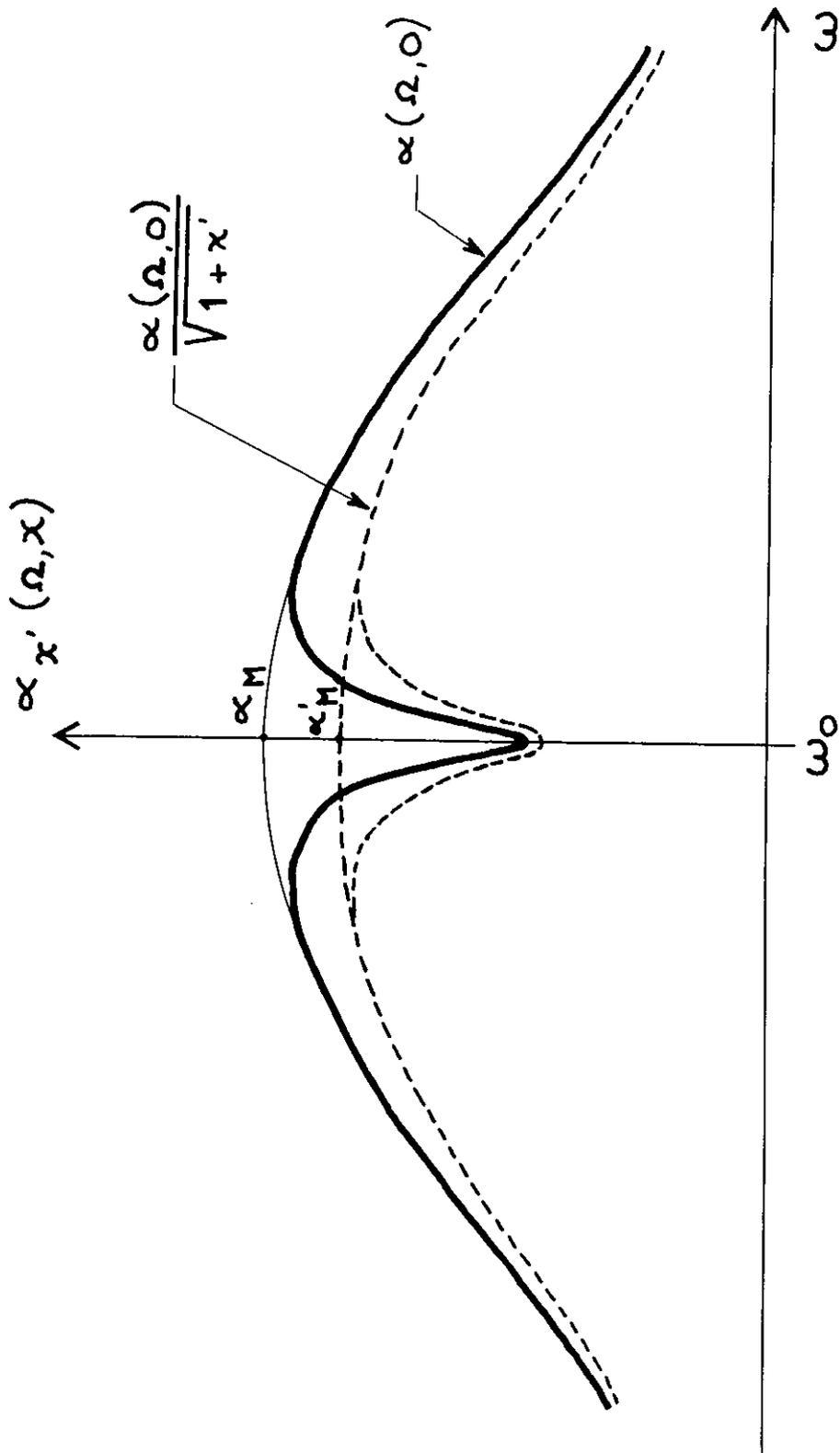
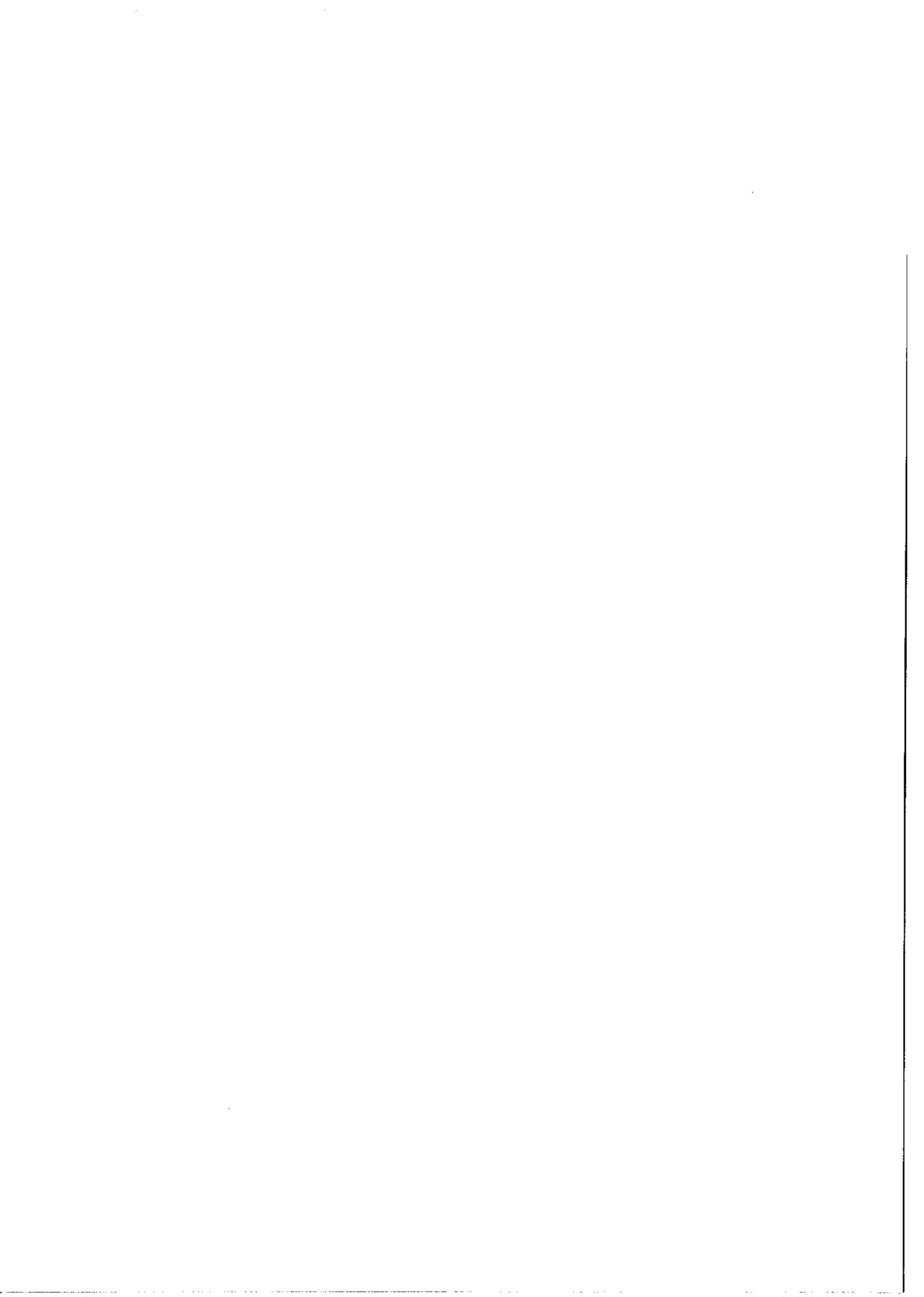


Figure 26

Effet d'un champ sonde d'intensité non négligeable. Elargissement du pic de saturation et diminution du contraste relatif.



B. SATURATION DE L'ABSORPTION POUR UNE TRANSITION PRESENTANT
UNE STRUCTURE - SYSTEME A TROIS NIVEAUX.

1. POSITION DU PROBLEME.

Nous nous intéressons essentiellement au problème des intensités relatives en absorption saturée pour les différentes composantes d'une structure hyperfine. Chacun des niveaux a et b possède sa propre structure hyperfine (Fig. 27a) ; nous supposons que les composantes sont bien séparées du point de vue de la largeur homogène et que l'étendue totale de la structure est très inférieure à la largeur Doppler. Comme dans les calculs précédents le champ sonde est supposé non saturant, l'absorption très faible et on se place dans le cas de deux ondes de même fréquence ω . Dans ce cas lorsque la fréquence ω varie il apparaît une résonance à chaque fois que la fréquence du laser coïncide avec celle de l'une des composantes (Fig. 20b). Les positions des composantes et leurs écarts correspondent aux valeurs réelles.

Supposons maintenant que ω soit proche de la fréquence moyenne de deux composantes i et j connectées par un niveau commun :

$\omega \approx \frac{\omega_i + \omega_j}{2}$. Dans ce cas les seuls atomes en interaction simultanée avec les deux champs sont ceux dont la vitesse longitudinale est voisine de $\pm \frac{\omega_i - \omega_j}{2k}$ (Fig. 27b). Ces atomes "voient" le champ saturant à la fréquence de l'une des transitions et le champ sonde à la fréquence de l'autre. Pour chacune des classes de vitesse $\frac{\omega_i - \omega_j}{2k}$ ou $-\frac{\omega_i - \omega_j}{2k}$, les atomes en interaction simultanée avec les deux champs appartiennent à des transitions différentes, mais le couplage de ces transitions par l'intermédiaire du niveau commun entraîne l'existence

d'une résonance supplémentaire. Ce phénomène existe aussi lorsque les composantes sont couplées par le niveau supérieur.

En définitive la méthode donne non seulement des résonances normales correspondant à chaque composante mais aussi des résonances parasites pour chaque couple de deux composantes ayant un niveau en commun. La position des composantes parasites est connue sans ambiguïté mais leur intensité est parfois impossible à calculer a priori comme nous allons le montrer dans les calculs qui suivent. Dans certains cas on peut aussi observer une autre classe de raies parasites : lorsque deux composantes à niveaux distincts sont telles que le niveau supérieur de l'une est connecté au niveau inférieur de l'autre par une troisième transition, l'émission spontanée couple les deux composantes. Cette situation s'analyse en considérant le système à quatre niveaux. Cependant le couplage n'est important que si l'émission spontanée entre les deux niveaux hyperfins est elle-même importante, ce qui n'est pas le cas pour la transition du baryum que nous étudions. Il en résulte que l'étude théorique de notre problème se ramène à l'analyse du cas de deux transitions de fréquence voisine directement couplées soit par leur niveau supérieur soit par leur niveau inférieur, c'est-à-dire au cas d'un système à trois niveaux.

2. ETUDE D'UN SYSTEME A TROIS NIVEAUX.

Nous allons effectuer ce calcul dans le cadre de la théorie simplifiée sans tenir compte des effets de cohérence. En effet nous avons vu que les termes correspondants sont faibles pour la transition qui

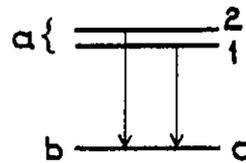
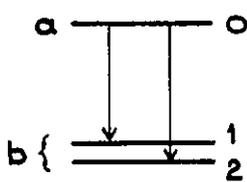
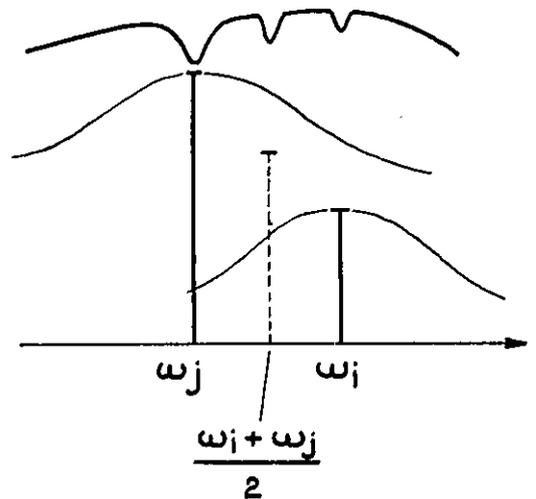
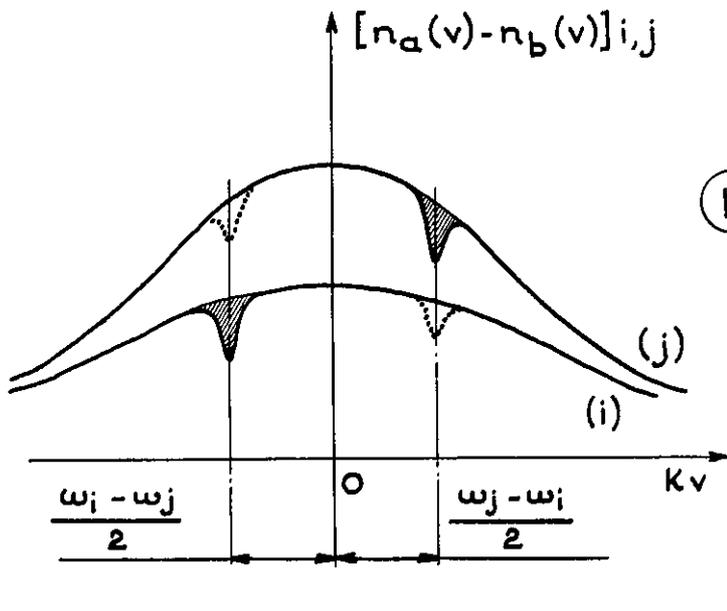
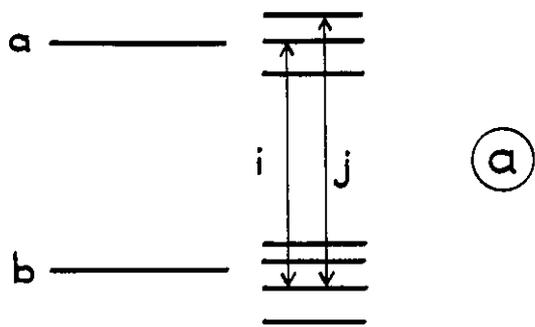
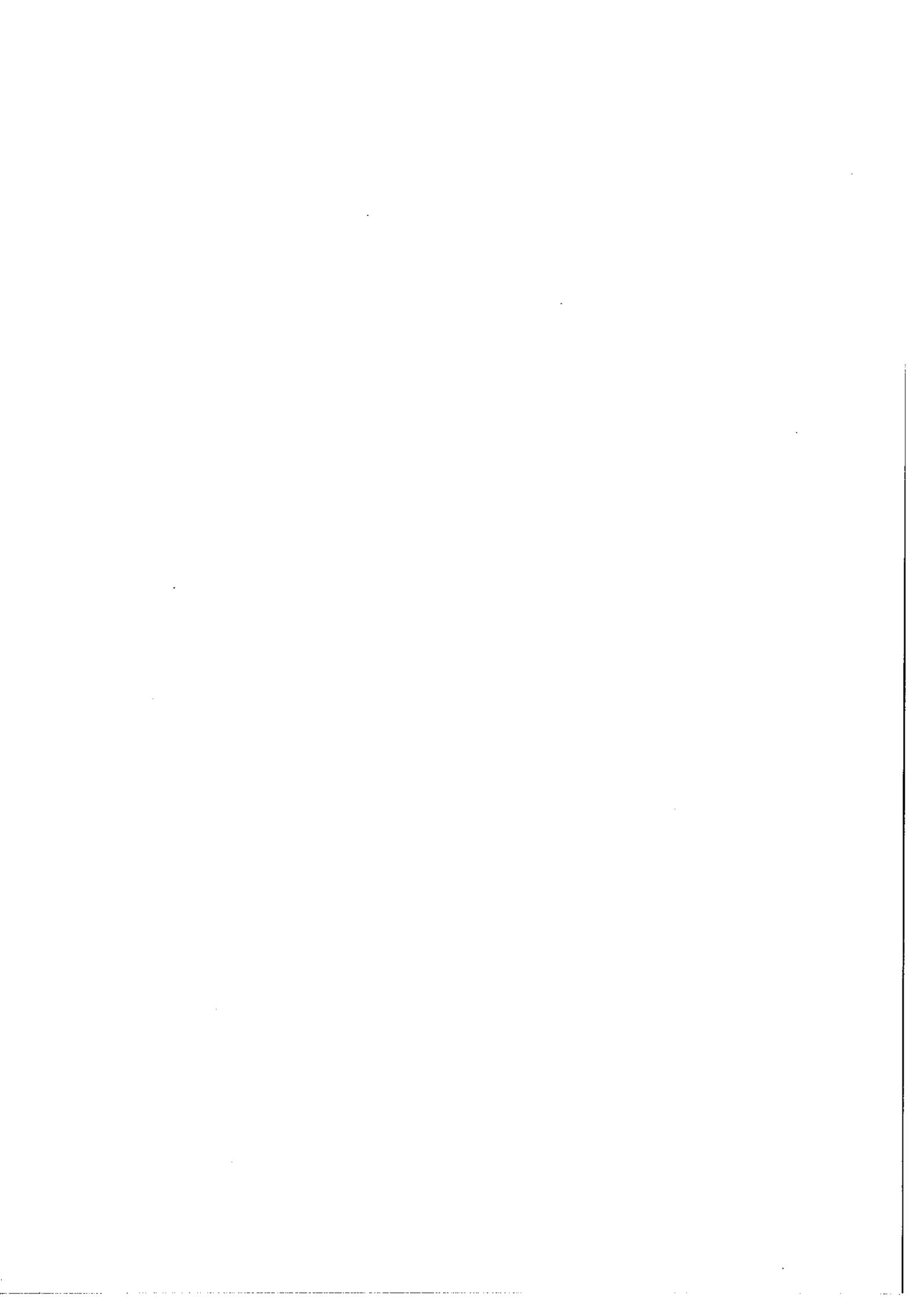


Figure 27

Résonance parasite pour deux composantes connectées par un niveau commun.



nous intéresse. Nous allons envisager successivement les deux cas de figure possible : niveau inférieur ou supérieur commun (Fig. 27c).

Nous tenons compte ici des effets de l'émission spontanée ; bien que négligeable dans notre cas elle est essentielle pour expliquer certaines particularités dans l'intensité des composantes parasites.

Niveau inférieur commun :

Dans les expériences qui suivent les indices 0, 1 et 2 désignent respectivement le niveau commun et les deux niveaux hyperfins ; les constantes de relaxation sont γ_0 , γ_1 , γ_2 , les largeurs homogènes γ_{01} , γ_{02} et les probabilités d'émission spontanée β_{20} et β_{10} ; $n_0(\nu)$, $n_1(\nu)$, $n_2(\nu)$ sont les densités de population et $n_0^0(\nu)$, $n_1^0(\nu)$, $n_2^0(\nu)$ sont les densités de population en l'absence de champs ; enfin $W_{i0}^{\pm}(\nu)$ représente la probabilité de transition induite entre les niveaux 0 et i par le champ saturant (signe +) et par le champ sonde (signe -) telle qu'elle a été définie dans le paragraphe I,1.

En régime permanent, en présence du champ saturant seul les populations sont données par :

$$\lambda_1(\nu) - \gamma_1 n_1(\nu) - W_{10}^+(\nu) (n_1(\nu) - n_0(\nu)) = 0$$

$$\lambda_2(\nu) - \gamma_2 n_2(\nu) - W_{20}^+(\nu) (n_2(\nu) - n_0(\nu)) = 0$$

$$\begin{aligned} \lambda_0(\nu) - \gamma_0 n_0(\nu) + W_{10}^+(n_1(\nu) - n_0(\nu)) + W_{20}^+(n_2(\nu) - n_0(\nu)) \\ + \beta_{10} n_1(\nu) + \beta_{20} n_2(\nu) = 0 \end{aligned}$$

La résolution de ce système donne :

$$\Delta n_{10}(v) = n_1(v) - n_0(v) =$$

$$\Delta n_{10}^0(v) \frac{1 + W_{20}^+(v) \times \frac{1 + \alpha_{20}}{\gamma_2}}{1 + \frac{2W_{10}^+(v)}{\gamma_{10}} + \frac{2W_{20}^+(v)}{\gamma_{20}} + \frac{W_{10}^+(v)W_{20}^+(v)}{\gamma_0\gamma_1\gamma_2} \times (\gamma_0 + \gamma_1 + \gamma_2 - \beta_{10} - \beta_{20})}$$

On obtient $\Delta n_{20}(v)$ à partir de $\Delta n_{10}(v)$ simplement par permutation des indices 1 et 2. Dans l'expression ci-dessus on a :

$$\frac{2}{\gamma_{i0}} = \frac{1}{\gamma_0} + \frac{1}{\gamma_i} - \frac{\beta_{i0}}{\gamma_0\gamma_i} \quad i = 1, 2$$

$$\alpha_{20} = \frac{\gamma_2}{\gamma_0} \frac{\Delta n_{12}^0}{\Delta n_{10}^0} \left(1 - \frac{\beta_{20}}{\gamma_2}\right)$$

$$\Delta n_{10}^0(v) = n_1^0(v) - n_0^0(v) = \frac{\lambda_1(v)}{\gamma_1} - \frac{\lambda_0(v)}{\gamma_0} - \frac{1}{\gamma_0} (\beta_{10} \frac{\lambda_1(v)}{\gamma_1} + \beta_{20} \frac{\lambda_2(v)}{\gamma_2})$$

La puissance absorbée sur le champ sonde est maintenant :

$$P_-(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} [\Delta n_{10}(v) \bar{W}_{10}(v) + \Delta n_{20}(v) \bar{W}_{20}(v)] dv$$

Le calcul, assez délicat, de cette expression se simplifie par les remarques suivantes. On suppose que les composantes sont bien séparées du point de vue de la largeur homogène soit :

$$\Delta\omega = |\omega_{10} - \omega_{20}| \gg \gamma_{01}, \gamma_{02}$$

et que les structures hyperfines de chacun des niveaux étudiés sont bien distinctes soit :

$$\omega_{01}, \omega_{02} \gg \omega_{12}$$

Dans cette hypothèse considérons les trois régions qui vont nous inté-

resser dans toutes les valeurs possibles de ω : $\omega \neq \omega_{10}$, $\omega \neq \omega_{20}$ et $\omega \neq \frac{\omega_{10} + \omega_{20}}{2}$. Dans chacune de ces régions la forme Lorentz des fonctions $W_{i0}^{\pm}(v)$ autorise dans les expressions des $\Delta n_{i0}(v)$ à ne conserver que les termes en résonance simultanée avec les fonctions d'analyse $W_{i0}^{\pm}(v)$ pour une classe de vitesse v donnée. Notons que dans tous les cas le terme produit $W_{10}^+(v) \cdot W_{20}^+(v)$ est petit devant $W_{10}^+(v)$ ou $W_{20}^+(v)$.

- Région $\omega \neq \omega_{10}$:

la puissance absorbée est :

$$P_{-}^1(\omega) \neq -\frac{\hbar\omega}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} [\Delta n_{10}^0(v) \frac{1}{1 + \frac{2W_{10}^+(v)}{\gamma_{01}'}} W_{10}^-(v) + \Delta n_{20}^0(v) W_{20}^-(v)] dv$$

ce qui donne le résultat attendu dans le cas d'une raie sans structure (on suppose encore la largeur Doppler très grande devant la largeur homogène) :

$$P_{-}^1(\omega) \neq -\frac{\pi^2 \omega}{\hbar \omega_d} E_{-}^2 \left\{ \Delta n_{10}^0 P_{10}^2 [1 - b_1 \mathcal{L}(\Omega_{20}, \Gamma_{10})] e^{-\left(\frac{\Omega_{10}}{\omega_d}\right)^2} + \Delta n_{20}^0 \mathcal{P}_{20}^2 e^{-\left(\frac{\Omega_{20}}{\omega_d}\right)^2} \right\}$$

expression dans laquelle

$$b_1 = \frac{\chi_{10}}{1 + \chi_{10} + \sqrt{1 + \chi_{10}}} \quad \text{et} \quad \chi_{10} = \frac{\mathcal{P}_{10}^2 E_{+}^2}{\pi^2 \gamma_{01}' \gamma_{10}'}$$

$$\mathcal{L}(\Omega_{01}, \Gamma_{10}) = \frac{\Gamma_{10}^2}{\Gamma_{10}^2 + \Omega_{10}^2} \quad \text{et} \quad \Omega_{10} = \omega_{10} - \omega$$

$$\Gamma_{10} = \frac{\gamma_{01}}{2} (1 + \sqrt{1 + \chi_{10}})$$

- Région $\omega \neq \omega_{20}$

le résultat s'obtient directement à partir du cas précédent par permutation des indices 1 et 2 :

$$P_{-}^2(\omega) \neq - \frac{\pi \frac{3}{2} \omega E^2}{h \omega_d} \left\{ \Delta n_{20}^0 \mathcal{G}_{20}^2 [1 - b_2 \mathcal{L}(\Omega_{20}, \Gamma_{20})] e^{-\left(\frac{\Omega_{20}}{\omega_d}\right)^2} + \Delta n_{10}^0 \mathcal{G}_{10}^2 e^{-\left(\frac{\Omega_{10}}{\omega_d}\right)^2} \right\}$$

(b_2 , χ_{20} et Γ_{20} s'obtiennent à partir de b_1 , χ_{10} et Γ_{10} respectivement par permutation des indices 1 et 2).

- Région $\omega \neq \frac{\omega_{10} + \omega_{20}}{2}$

$$P_{-}^3(\omega) \neq \frac{h\omega}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} \left[\Delta n_{10}^0(v) \frac{1 + W_{20}^+(v) \left(\frac{1 + \alpha_{20}}{\gamma_2}\right)}{1 + \frac{2W_{20}^+(v)}{\gamma_{20}'}} W_{10}^-(v) + \Delta n_{20}^0(v) \frac{1 + W_{10}^+(v) \left(\frac{1 + \alpha_{10}}{\gamma_1}\right)}{1 + \frac{2W_{10}^+(v)}{\gamma_{10}'}} W_{20}^-(v) \right] dv$$

l'intégration s'effectue simplement en remarquant par exemple que le coefficient de $W_{01}^-(v)$ se met sous la forme :

$$\Delta n_{10}^0(v) \left[1 - \frac{\gamma_{20}'}{2\gamma_0} \frac{\Delta n_{20}^0}{\Delta n_{10}^0} \left(1 - \frac{\beta_{20}}{\gamma_2} \frac{\chi_{20} \gamma_{20}^2}{\gamma_{20}^2 (1 + \chi_{20}) + (\Omega_{20} + kv)^2} \right) \right]$$

et finalement on trouve :

$$\begin{aligned}
P_{-}^3(\omega) \# - \frac{\pi^3 \omega E_{-}^2}{h \omega_d} \left\{ \Delta n_{10}^0 \mathcal{P}_{10}^2 \left[1 - \frac{\gamma'_{20}}{2\gamma_0} \frac{\Delta n_{20}^0}{\Delta n_{10}^0} \left(1 - \frac{\beta_{20}}{\gamma_2} \right) \frac{x_{20} \gamma_{20}}{\gamma_{20}(1+x_{20}) + \gamma_{10} \sqrt{1+x_{20}}} \right. \right. \\
\left. \left. \mathcal{L} \left(\frac{\Omega_{10} + \Omega_{20}}{2}, \Gamma'_{20} \right) \right] e^{-\left(\frac{\Omega_{10}}{\omega_d}\right)^2} \right\} \\
+ \Delta n_{20}^0 \mathcal{P}_{20}^2 \left[1 - \frac{\gamma'_{10}}{2\gamma_0} \frac{\Delta n_{10}^0}{\Delta n_{20}^0} \left(1 - \frac{\beta_{10}}{\gamma_1} \right) \frac{x_{10} \gamma_{10}}{\gamma_{10}(1+x_{10}) + \gamma_{20} \sqrt{1+x_{10}}} \right. \\
\left. \left. \mathcal{L} \left(\frac{\Omega_{10} + \Omega_{20}}{2}, \Gamma'_{10} \right) \right] e^{-\left(\frac{\Omega_{20}}{\omega_d}\right)^2} \right\}
\end{aligned}$$

avec $\Gamma'_{20} = \frac{1}{2}(\gamma_{10} + \gamma_{20} \sqrt{1+x_{20}})$ et Γ'_{10} par permutation des indices 1 et 2 et pour $\Omega_{10} \# - \Omega_{20} \# \frac{\omega_{10} - \omega_{20}}{2}$

On peut regrouper les résultats sous une forme plus condensée : en supposant que la largeur Doppler est pratiquement infinie et en écrivant la quantité $P_{-}(\infty) - P_{-}(\omega)$, qui n'est autre que le signal proprement dit de saturation, on obtient l'expression suivante valable pour tout ω (dans chacune des régions intéressantes une seule quantité subsiste):

$$\begin{aligned}
P_{-}(\infty) - P_{-}(\omega) = - \frac{\pi^3 \omega E_{-}^2}{h \omega_d} \left[\Delta n_{10}^0 \mathcal{P}_{10}^2 b_1 \mathcal{L}(\Omega_{10}, \Gamma_{10}) + \Delta n_{20}^0 \mathcal{P}_{20}^2 b_2 \mathcal{L}(\Omega_{20}, \Gamma_{20}) \right. \\
+ \Delta n_{20}^0 \mathcal{P}_{10}^2 \frac{\gamma'_{20}}{2\gamma_0} \left(1 - \frac{\beta_{20}}{\gamma_2} \right) \frac{x_{20} \gamma_{20}}{\gamma_{20}(1+x_{20}) + \gamma_{10} \sqrt{1+x_{20}}} \mathcal{L} \left(\frac{\Omega_{10} + \Omega_{20}}{2}, \Gamma'_{20} \right) \\
(7) \\
\left. + \Delta n_{10}^0 \mathcal{P}_{20}^2 \frac{\gamma'_{10}}{2\gamma_0} \left(1 - \frac{\beta_{10}}{\gamma_1} \right) \frac{x_{10} \gamma_{10}}{\gamma_{10}(1+x_{10}) + \gamma_{20} \sqrt{1+x_{10}}} \mathcal{L} \left(\frac{\Omega_{10} + \Omega_{20}}{2}, \Gamma'_{10} \right) \right]
\end{aligned}$$

Niveau supérieur commun

En régime permanent les populations sont données par le système :

$$\lambda_0(v) - \gamma_0 n_0(v) - W_{01}^+(v) (n_0(v) - n_1(v)) - W_{02}^+(v) (n_0(v) - n_2(v)) = 0$$

$$\lambda_1(v) + \beta_{01} n_0(v) - \gamma_1 n_1(v) + W_{01}^+(v) (n_0(v) - n_1(v)) = 0$$

$$\lambda_2(v) + \beta_{02} n_0(v) - \gamma_2 n_2(v) + W_{02}^+(v) (n_0(v) - n_2(v)) = 0.$$

Une démarche tout à fait analogue au cas précédent conduit pour le signal de saturation à l'expression :

$$P_-(\infty) - P_-(\omega) = - \frac{\pi^{\frac{3}{2}} \omega E_-^2}{h \omega_d} \left[\Delta n_{01}^0 \mathcal{P}_{01}^2 b_1 \mathcal{L}(\Omega_{01}, \Gamma_{01}) + \Delta n_{02}^0 \mathcal{P}_{02}^2 b_2 \right. \\ \left. \mathcal{L}(\Omega_{02}, \Gamma_{02}) \right. \\ + \Delta n_{02}^0 \mathcal{P}_{01}^2 \frac{\gamma'_{02}}{2\gamma_0} \left(1 - \frac{\beta_{01}}{\gamma_1}\right) \frac{\chi_{02} \gamma_{02}}{\gamma_{02}(1+\chi_{02}) + \gamma_{01} \sqrt{1+\chi_{02}}} \mathcal{L}\left(\frac{\Omega_{01} + \Omega_{02}}{2}, \Gamma'_{02}\right) \\ (8) \\ \left. + \Delta n_{01}^0 \mathcal{P}_{02}^2 \frac{\gamma'_{01}}{2\gamma_0} \left(1 - \frac{\beta_{02}}{\gamma_2}\right) \frac{\chi_{01} \gamma_{01}}{\gamma_{01}(1+\chi_{01}) + \gamma_{02} \sqrt{1+\chi_{01}}} \mathcal{L}\left(\frac{\Omega_{01} + \Omega_{02}}{2}, \Gamma'_{01}\right) \right]$$

les notations sont identiques à celles de la formule (7) mais

$$\Delta n_{0i}^0 = \frac{\lambda_0}{\gamma_0} \left(1 - \frac{\beta_{0i}}{\gamma_i}\right) - \frac{\lambda_i}{\gamma_i} \quad i = 1, 2 .$$

Les équations (7) et (8) montrent que l'on obtient effectivement trois résonances dans chaque cas. Les deux premières correspondent aux résonances normales à la fréquence de chacune des composantes. La troisième correspond à une résonance supplémentaire parasite ; elle apparaît à mi-distance entre les deux autres. On notera que ces calculs

sont valables quelle que soit l'intensité du champ saturant. On trouvera en appendice un calcul effectué en tenant compte cette fois des termes de cohérence, mais valables seulement pour une saturation très faible.

3. INTENSITES RELATIVES DES RESONANCES :

Les équations (7) et (8) montrent qu'il n'y a pas de relation simple entre les intensités des différentes résonances. Cependant nous allons voir que pour les valeurs extrêmes des paramètres de saturation ($\chi \ll 1$ ou $\chi \gg 1$) on peut néanmoins les relier assez simplement aux intensités relatives habituelles en absorption non saturée si on néglige l'émission spontanée.

Intensités relatives des composantes normales :

Nous négligeons ici l'émission spontanée, hypothèse peu restrictive puisque dans tous les coefficients β_{0i} (et β_{i0}) sont à comparer à $\gamma_0 + \gamma_i$ et que par suite du rapport de branchement $\beta_{0i} \ll \gamma_0$ (et $\beta_{i0} \ll \gamma_i$); a fortiori $\beta_{0i} \ll \gamma_0 + \gamma_i$. Comme précédemment l'épaisseur optique est supposée très faible.

Niveau inférieur commun :

Nous avons à comparer $i_1 = \Delta n_{10}^0 \mathcal{P}_{10}^2 b_1$ à $i_2 = \Delta n_{20}^0 \mathcal{P}_{20}^2 b_2$ (intensités au sommet).

A saturation forte $b_1 = b_2 = 1$ et on a le résultat simple :

$$\frac{i_1}{i_2} = \frac{\Delta n_{10}^0 \mathcal{P}_{10}^2}{\Delta n_{20}^0 \mathcal{P}_{20}^2} = \frac{I_1}{I_2} \quad \text{où} \quad \frac{I_1}{I_2} \quad \text{est le rapport des}$$

intensités qu'on observerait au sommet en l'absence de toute saturation.

Les intensités relatives sont conservées.

A saturation faible : $b_i \neq \frac{1}{2} \chi_{i0}$ et

$$i_1 = \frac{1}{2} \Delta n_{10}^0 \mathcal{P}_{10}^4 E_+^2 \frac{1}{2\pi^2 \gamma_{10}} \left(\frac{1}{\gamma_0} + \frac{1}{\gamma_1} \right)$$

$$i_2 = \frac{1}{2} \Delta n_{20}^0 \mathcal{P}_{20}^4 E_+^2 \frac{1}{2\pi^2 \gamma_{20}} \left(\frac{1}{\gamma_0} + \frac{1}{\gamma_2} \right)$$

Si toutes les constantes de relaxation sont identiques

$$\frac{i_1}{i_2} = \frac{\Delta n_{10}^0 \mathcal{P}_{10}^4}{\Delta n_{20}^0 \mathcal{P}_{20}^4} = \left(\frac{I_1}{I_2} \right)^2 \times \frac{\Delta n_{20}^0}{\Delta n_{10}^0}$$

et dans l'hypothèse, raisonnable, où le niveau inférieur est de beaucoup le plus peuplé ($n_0^0 \gg n_1^0, n_2^0$) on a :

$$\frac{i_1}{i_2} = \left(\frac{I_1}{I_2} \right)^2$$

Dans le cas particulier de la raie étudiée dans la vapeur de baryum le niveau commun est métastable

$$\gamma_0 \ll \gamma_1, \gamma_2 \quad \text{et} \quad \frac{i_1}{i_2} = \left(\frac{I_1}{I_2} \right)^2 \times \frac{\gamma_{20}}{\gamma_{10}}$$

et à pression faible

$$\gamma_{i0} \neq \frac{1}{2}(\gamma_0 + \gamma_i) \neq \frac{1}{2} \gamma_i \quad \text{donc} \quad \frac{i_1}{i_2} \neq \left(\frac{I_1}{I_2} \right)^2 \frac{\gamma_2}{\gamma_1}$$

Niveau supérieur commun :

A saturation élevée on a encore $b_1 \neq b_2 \neq 1$ et

$$\frac{i_1}{i_2} = \frac{I_1}{I_2}$$

A saturation faible on a, si toutes les constantes de relaxation sont identiques :

$$\frac{i_1}{i_2} = \left(\frac{I_1}{I_2}\right)^2 \times \frac{\Delta n_{02}^0}{\Delta n_{01}^0} \quad \text{mais cette fois si on suppose encore les}$$

niveaux inférieurs très peuplés $n_{1,2}^0 \gg n_0^0$

$$\frac{i_1}{i_2} = \left(\frac{I_1}{I_2}\right)^2 \times \frac{n_2^0}{n_1^0} = \left(\frac{I_1}{I_2}\right)^2 \times \frac{g_2}{g_1} \quad g_2 \text{ et } g_1 \text{ sont les poids}$$

statistiques des deux niveaux. Le rapport des intensités est le carré du rapport des intensités habituelles, pondéré par le rapport des poids statistiques. Enfin dans le cas particulier de la raie du baryum on a cette fois

$$\gamma_0 \gg \gamma_1, \gamma_2 \quad \text{et} \quad \frac{i_1}{i_2} = \left(\frac{I_1}{I_2}\right)^2 \cdot \frac{g_2}{g_1} \cdot \frac{\gamma_{02}}{\gamma_{01}} \cdot \frac{\gamma_2}{\gamma_1}$$

A pression faible $\gamma_{0i} \# \frac{\gamma_0 + \gamma_i}{2} \# \frac{1}{2} \gamma_0$. De plus les niveaux 1 et 2 sont métastables, ils ne peuvent se dépeupler que par collision ;

$\gamma_1 \# \gamma_2$ et finalement :

$$\frac{i_1}{i_2} \# \left(\frac{I_1}{I_2}\right)^2 \cdot \frac{g_2}{g_1}$$

Ces résultats montrent qu'à saturation élevée les intensités relatives sont à peu de chose près celles observables en absorption classique. Mais ce cas est peu intéressant car l'élargissement par saturation diminue d'autant le gain en résolution apporté par cette méthode. A saturation faible au contraire les intensités relatives sont profondément modifiées. En particulier les résonances les plus faibles sont défavorisées à cause du rapport $\left(\frac{I_1}{I_2}\right)^2$.

Intensités des composantes parasites :

Nous les comparons aux intensités des composantes couplées correspondantes.

- Niveau commun inférieur :

Nous avons à comparer $i_1 = \Delta n_{10}^0 \mathcal{P}_{10}^2 b_1$

$$i_2 = \Delta n_{20}^0 \mathcal{P}_{20}^2 b_2$$

et $i_{12} = \Delta n_{20}^0 \mathcal{P}_{10}^2 \frac{\gamma'_{20}}{2\gamma_0} \left(1 - \frac{\beta_{20}}{\gamma_2}\right) \frac{x_{20}\gamma_{20}}{\gamma_{20}(1+x_{20}) + \gamma_{10}\sqrt{1+x_{20}}}$

$$+ \Delta n_{10}^0 \mathcal{P}_{20}^2 \frac{\gamma'_{10}}{2\gamma_0} \left(1 - \frac{\beta_{10}}{\gamma_1}\right) \frac{x_{10}\gamma_{10}}{\gamma_{10}(1+x_{10}) + \gamma_{20}\sqrt{1+x_{10}}}$$

La comparaison n'est simple que si on néglige l'émission spontanée. Cette hypothèse n'est pas ici très restrictive puisque, en général, à cause du facteur de branchement, γ_i est sensiblement supérieur à β_{i0} . De plus dans le cas, le plus fréquent, où le niveau inférieur est beaucoup plus peuplé que les niveaux supérieurs (c'est-à-dire $n_0^0 \gg n_1^0, n_2^0$) les quantités à comparer s'écrivent :

à saturation faible :

$$i_1 = \frac{n_0^0}{2} \mathcal{P}_{10}^4 E^2 \frac{1}{2\pi^2 \gamma_{01}} \left(\frac{1}{\gamma_0} + \frac{1}{\gamma_1}\right)$$

$$i_2 = \frac{n_0^0}{2} \mathcal{P}_{20}^4 E^2 \frac{1}{2\pi^2 \gamma_{02}} \left(\frac{1}{\gamma_0} + \frac{1}{\gamma_2}\right)$$

$$i_{12} = n_0^0 \mathcal{P}_{10}^2 \mathcal{P}_{20}^2 E^2 \frac{1}{\pi^2 \gamma_0 (\gamma_{01} + \gamma_{02})}$$

et à saturation élevée $i_1 = n_0^0 \mathcal{P}_{10}^2$

$$i_2 = n_0^0 \mathcal{P}_{20}^2$$

$$i_{12} = n_0^0 \rho_{10}^2 \frac{\gamma'_{20}}{2\gamma_0} + n_0^2 \rho_{20}^2 \frac{\gamma'_{10}}{2\gamma_0}$$

Si les constantes de relaxation sont toutes du même ordre de grandeur, c'est-à-dire si $\gamma_{10} \# \gamma_{20} \# \gamma_0 \# \gamma_1 \# \gamma_2$ on déduit des grandeurs précédentes :

à saturation faible : $i_{12} = \sqrt{i_1 \times i_2}$

à saturation forte : $i_{12} = \frac{1}{2}(i_1 + i_2)$

Dans le cas du baryum, pour la transition que nous étudions, on a au contraire $\gamma_0 \ll \gamma_{1,2}$. On en déduit alors que :

à saturation faible $i_{12} = \frac{4 \sqrt{\gamma_{01} \gamma_{02}}}{\gamma_{01} + \gamma_{02}} \sqrt{i_1 \times i_2}$

à saturation forte $i_{12} = i_1 + i_2$

Ces résultats montrent qu'on ne peut négliger l'importance de ces résonances parasites. Dans le cas particulier où l'une des deux composantes couplée est d'intensité très faible, l'intensité de la composante parasite lui est supérieure et on peut alors l'utiliser dans la mesure des écarts hyperfins à la place de la composante faible. En effet à saturation faible cette dernière est défavorisée et peut ne pas être détectée. Enfin puisque $\beta_{i0} \ll \gamma_i$ les coefficients $1 - \frac{\beta_{i0}}{\gamma_i}$ sont toujours positifs et les résonances parasites apparaissent toujours avec le signe des résonances normales.

Niveau commun supérieur.

Cette fois le problème est plus difficile car on ne peut plus négliger a priori l'effet de l'émission spontanée dans i_{12} . En effet

on ne peut rien dire du rapport $\frac{\beta_{0i}}{\gamma_i}$ qui compare l'émission spontanée à partir du niveau commun supérieur 0, à la largeur du niveau inférieur i . Il n'y a plus de relation simple entre i_1 , i_2 et i_{12} mais il apparaît le fait nouveau suivant : la résonance parasite peut apparaître avec le signe inverse de celui des résonances normales, c'est-à-dire comme une augmentation dans le coefficient d'absorption.

En effet examinons par exemple le coefficient du premier terme de i_{12} . Son signe est donné par celui de $1 - \frac{\beta_{01}}{\gamma_1}$ soit celui de : $\gamma_1 - \beta_{01}$. Dans les cas où on peut négliger l'émission spontanée (niveaux inférieurs à courte durée de vie par exemple) les conclusions sont analogues à celles où le niveau inférieur est commun, mais si celle-ci domine (niveaux inférieurs stables) il se peut que $\beta_{0i} > \gamma_i$ et la résonance parasite a le signe inverse des résonances normales. Tous les cas intermédiaires sont possibles et en particulier celui pour lequel $\beta_{0i} \# \gamma_i$, correspondant pratiquement à l'absence de ces résonances parasites. Schawlow et coll. dans leur étude de la structure hyperfine des raies D_1 et D_2 du sodium ont effectivement observé de telles résonances parasites négatives [14]. Pour cette expérience les niveaux inférieurs sont ceux du fondamental ; il n'est pas nécessaire d'exciter la décharge et la pression de sodium est faible (les γ_i sont très faibles). De plus il s'agit de transitions de résonance ; l'émission spontanée est importante et $\beta_{0i} > \gamma_i$.

Physiquement le processus s'explique de la façon suivante. Une partie des atomes pompés par le champ saturant ver le niveau supérieur à partir de l'un des niveaux inférieurs retourne vers l'autre niveau

par émission spontanée. Sur cet autre niveau ils apparaissent pour le champ sonde comme une augmentation de la population et le coefficient d'absorption augmente à l'inverse de ce qui se produit pour les résonances normales. Ceci suppose que pendant la durée du processus les atomes n'ont pas modifié leur vitesse. Peu de collisions et des β_{0i} élevés sont favorables à cette situation de même qu'une durée de vie élevée pour les niveaux inférieurs (niveaux stables).

Remarque 1 :

Si la largeur Doppler n'est pas infinie les intensités des résonances parasites doivent être pondérées par le facteur $e^{-\left(\frac{\Delta\omega}{2\omega_d}\right)^2}$ où $\Delta\omega$ est la distance des deux composantes couplées.

Remarque 2 :

Si l'on désire appliquer la méthode à un mélange d'isotopes ne présentant pas de structure hyperfine, les différentes composantes isotopiques sont sans connexion entre elles. Le phénomène des résonances parasites n'apparaît pas. Le rapport des intensités de deux composantes isotopiques est encore

$$\frac{i_1}{i_2} = \frac{\Delta n_{01}^0 \cdot \frac{2}{10} b_1}{\Delta n_{02}^0 \cdot \frac{2}{20} b_2}$$

mais cette fois $\frac{2}{10} = \frac{2}{20}$; de plus les largeurs homogènes sont iden-

tiques et $b_1 = b_2$. D'où $\frac{i_1}{i_2} = \frac{\Delta n_{01}^0}{\Delta n_{02}^0}$ (quelle que soit la saturation)

ce qui est aussi le rapport des abondances. Les intensités relatives, quelle que soit la saturation, restent celles observées en absorption classique :

$$\frac{i_1}{i_2} = \frac{I_1}{I_2}$$

Il résulte de cette étude que l'application des méthodes d'absorption saturée à la mesure de structures hyperfines serrées est un problème difficile à cause des modifications importantes apportées aux intensités relatives et à la gêne assez considérable due aux composantes parasites. Néanmoins lorsque la structure est bien résolue, même à saturation élevée, une étude faite à des degrés différents de saturation doit permettre l'identification des composantes compte tenu des résultats ci-dessus. Par contre si la structure est mal résolue l'identification est beaucoup plus délicate ; les méthodes classiques de déconvolution sont elles-mêmes d'emploi problématique, ne serait-ce que par l'indétermination sur les intensités des composantes parasites pour lesquelles les effets des collisions peuvent jouer un rôle important.

CHAPITRE III

APPLICATION DES METHODES D'ABSORPTION SATUREE A L'ETUDE DE LA
STRUCTURE HYPERFINE D'UNE TRANSITION ATOMIQUE DU BARYUM.

Au cours de l'expérience préliminaire présentée au Chapitre I nous avons pu observer le pic de saturation pour la transition à $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$ du baryum I grâce à la source laser décrite dans la première partie. Nous avons utilisé alors du baryum naturel contenant essentiellement l'isotope 138. Nous avons déjà exposé au cours de l'introduction les raisons qui nous ont amené à choisir cette même transition pour une étude de structure hyperfine. Cependant notre premier montage demandait à être amélioré sur plusieurs points, notamment en ce qui concerne le problème de la lumière de retour vers le laser et celui de la détection avec un bon rapport Signal/bruit du signal de saturation seul. De plus, la détermination précise de la position des composantes hyperfines nécessite l'enregistrement simultané de la structure et des franges de références données par le Fabry-Perot multipassages.

Nous avons donc été amené à concevoir un montage plus complexe répondant à ces conditions. Ce nouveau dispositif expérimental et les

résultats qu'il m'a permis d'obtenir est décrit dans un article présenté en annexe. Ainsi, comme dans le cas de l'étude des raies laser dans les vapeurs métalliques, je n'aborde ici que les quelques points particuliers de ce travail, qui n'ont été que peu développés dans la publication.

A) DETECTION DU SIGNAL DE SATURATION.

Dans le but de détecter le signal de saturation seul, affranchi du "fond" plus important dû à l'absorption non saturée, nous avons utilisé un système à deux faisceaux sondes se propageant dans la cuve à absorption. Seul l'un des faisceaux parcourt la région saturée par le faisceau incident, l'autre traverse une région voisine mais non saturée. Cette disposition nous a pratiquement été imposée par la nature même de la source lumineuse. Le fonctionnement en impulsions du laser, sa puissance limitée, ses diverses instabilités, sont les raisons essentielles qui nous ont conduit à adopter ce dispositif qui, par ailleurs, comporte quelques points faibles dus par exemple à l'étroitesse des faisceaux (0,3 mm) et à l'hétérogénéité du milieu absorbant.

La conception du dispositif optique (annexe fig. 1) est étroitement liée à celle de l'électronique qui lui est associée. Bien adaptée à la détection des impulsions elle permet de s'affranchir en partie des fluctuations de source et d'enregistrer le signal de saturation seul. Nous complétons ici par les figures 28, 29 et 30, le schéma de principe donné en annexe (fig. 3).

La détection à portes sélectionne au cours du temps la partie

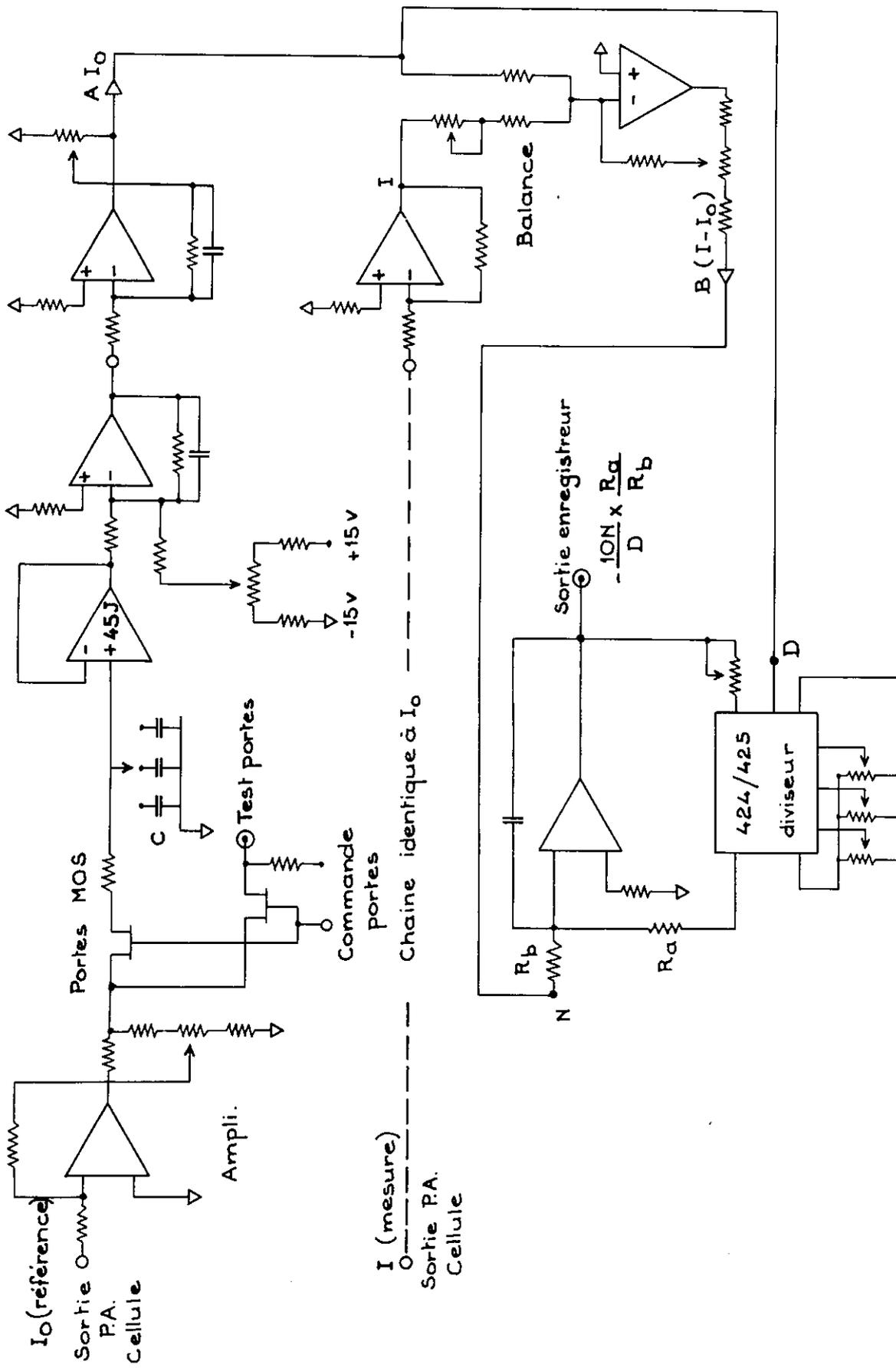
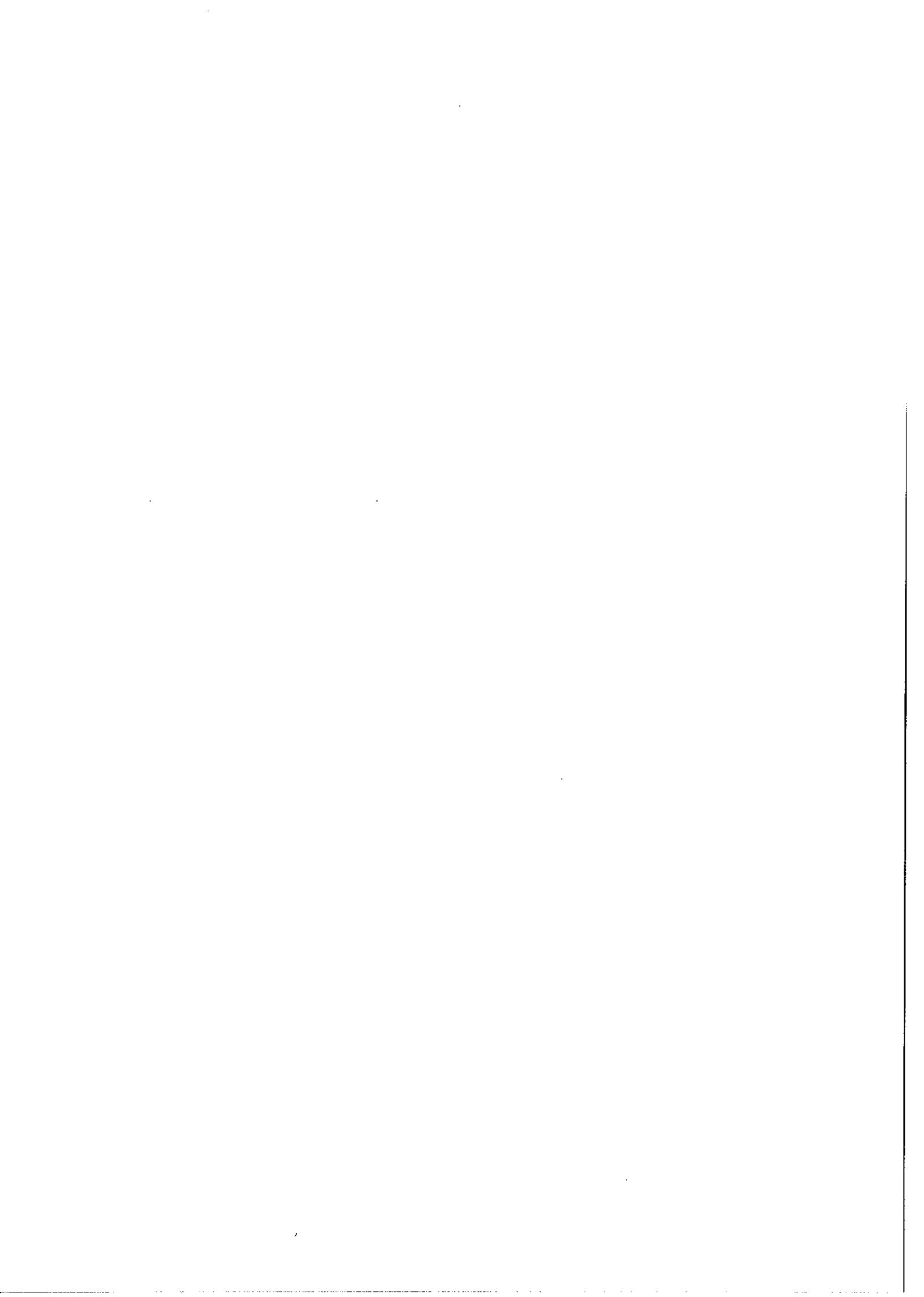


Figure 28

Montage électronique. Détection des impulsions par portes analogiques (voies référence et signal) - Ratiomètre.



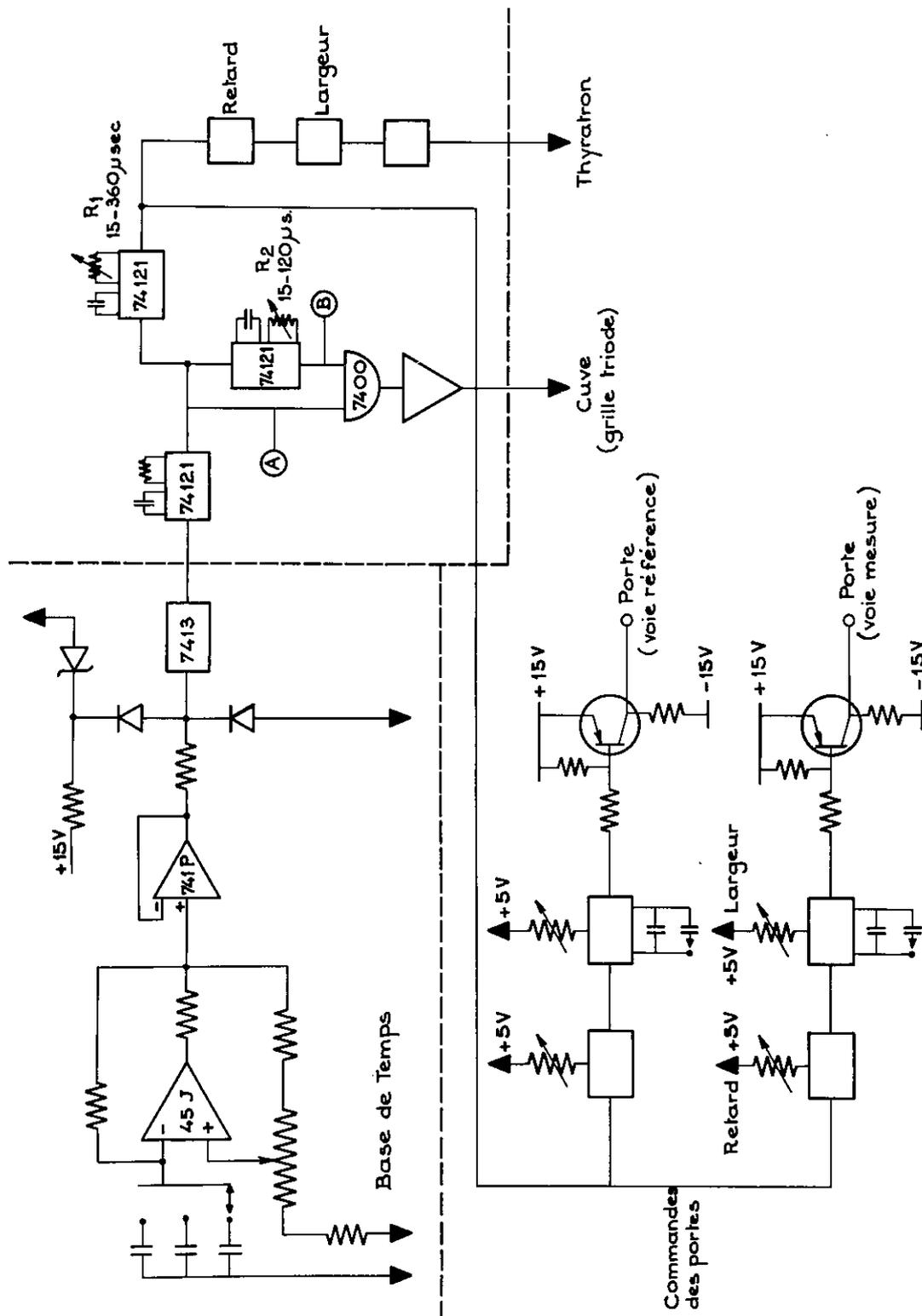
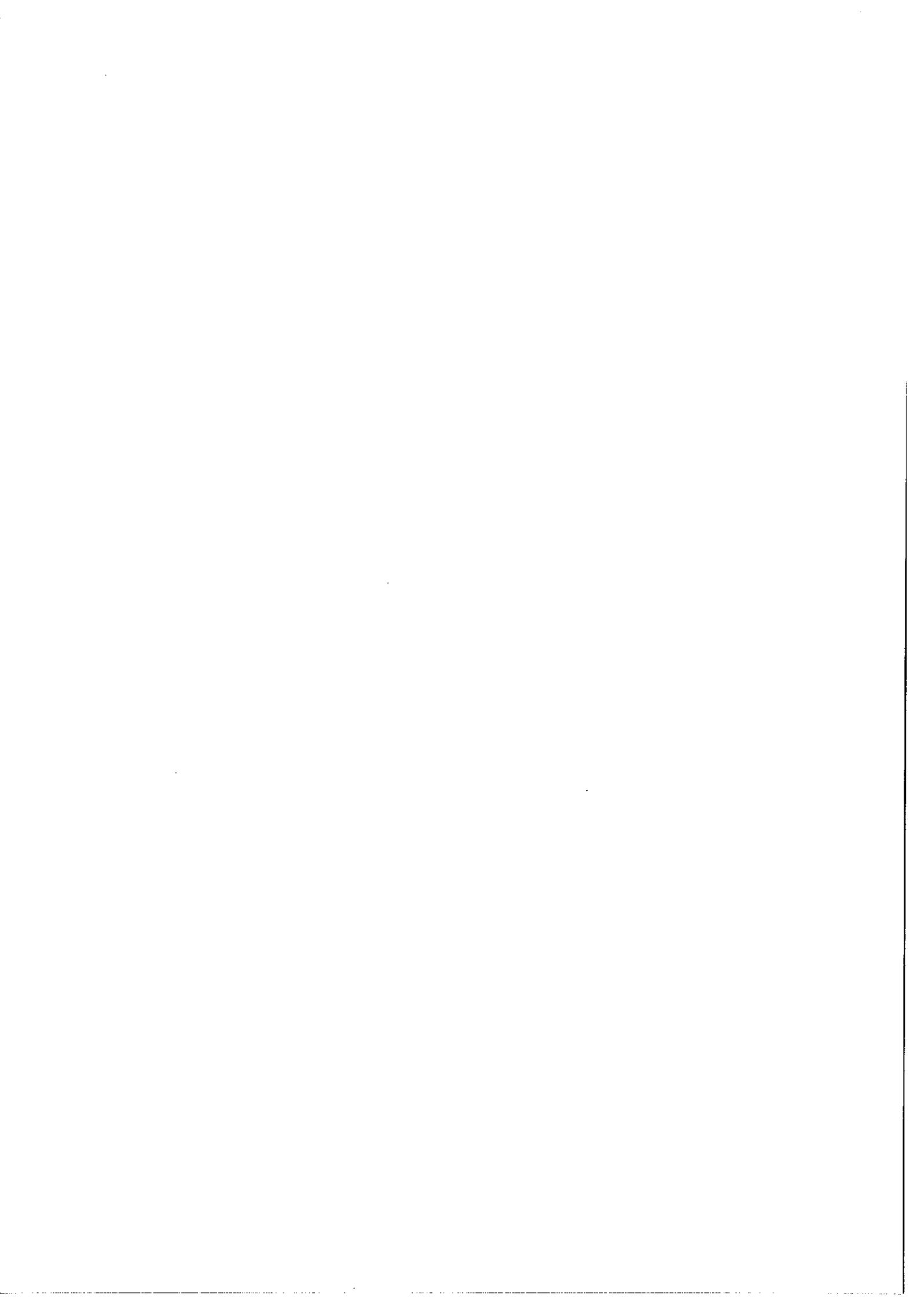


Figure 29

Montage électronique - Base de temps et synchronisation des différents signaux de commande.



utile du signal électrique, c'est-à-dire celle correspondant à l'impulsion. La durée de cette dernière ($\sim 10^{-6}$ s.) est faible devant la période de répétition ($\sim 10^{-2}$ s.). Aussi on gagne beaucoup en rapport signal/bruit en éliminant le bruit de récepteur entre deux impulsions, période pendant laquelle aucun signal utile n'apparaît. Pendant la durée d'ouverture des portes dont l'impédance est très faible, les capacités c , assez faibles pour se charger avec une constante de temps τ_c inférieure au temps de montée des impulsions électriques (0,5 μ sec. environ), suivent l'évolution du signal. Si la durée d'ouverture est faible devant celle de l'impulsion électrique, l'impédance d'entrée des amplificateurs étant pratiquement infinie, le système se comporte comme un détecteur de crête. La constante de temps en sortie est $\tau = \tau_c \frac{\Delta t}{\delta t}$ (Δt est la période de répétition des impulsions et δt le temps pendant lequel la porte est ouverte).

Le diviseur fonctionne avec des signaux continus et n'est linéaire que pour des gammes de tension bien définies (0,1 à 10 Volts pour le dénominateur, -10 à +10 Volts pour le numérateur). C'est pourquoi il a été nécessaire de prévoir sur chacune des deux voies signal (signal de référence et signal de mesure) des réglages indépendants (réglages de zéros et équilibrages) ainsi que des amplificateurs supplémentaires (amplificateurs de gains A et B sur la figure 28). Les deux voies de détection sont par ailleurs aussi identiques que possible.

La figure 30 montre les différents signaux de commande dont la synchronisation est assurée à partir d'une base de temps unique à fréquence ajustable (fig. 29). On remarque en particulier que le système

permet de déclencher le laser soit pendant l'allumage de la cuve, soit après avec un retard maximum de l'ordre de 360 μ sec. . L'ensemble comprenant le retard commun (1 msec.) et les deux retards ajustables indépendamment R_1 et R_2 permet le déclenchement du laser pendant ou après l'excitation de la cuve avec une excellente synchronisation (effet de "Jitter" très faible). Notons que le signal de commande du laser, après mise en forme, est appliqué à la grille d'un petit thyatron qui, à son tour, commande le thyatron de puissance. Quant au signal de commande de la cuve, il est appliqué à la grille d'une triode haute tension. Celle-ci est placée en série avec le tube à décharge et joue le rôle d'interrupteur de courant. Le dispositif d'allumage de la cuve suivant des créneaux synchrones des impulsions laser a été conçu dans le but d'opérer en post-décharge ; on élimine ainsi la lumière parasite provenant de la cuve. Bien que faible et d'intensité constante au cours du temps pour une excitation continue de la cuve, ce flux parasite peut devenir gênant si on travaille en faisceaux sondes très atténués : les fluctuations et le bruit de photons qu'il apporte ne sont plus alors négligeables. En fait, nous avons pu opérer en post-décharge grâce à la métastabilité du niveau inférieur $6s5d \ ^1D_2$ de la transition et du même coup nous avons pu étudier la relaxation de ce niveau.

B) ETUDE DU TEMPS DE RELAXATION DU NIVEAU METASTABLE.

Cette étude a été menée de la façon suivante. Le laser est excité avec un retard Δt par rapport à l'instant d'excitation de la

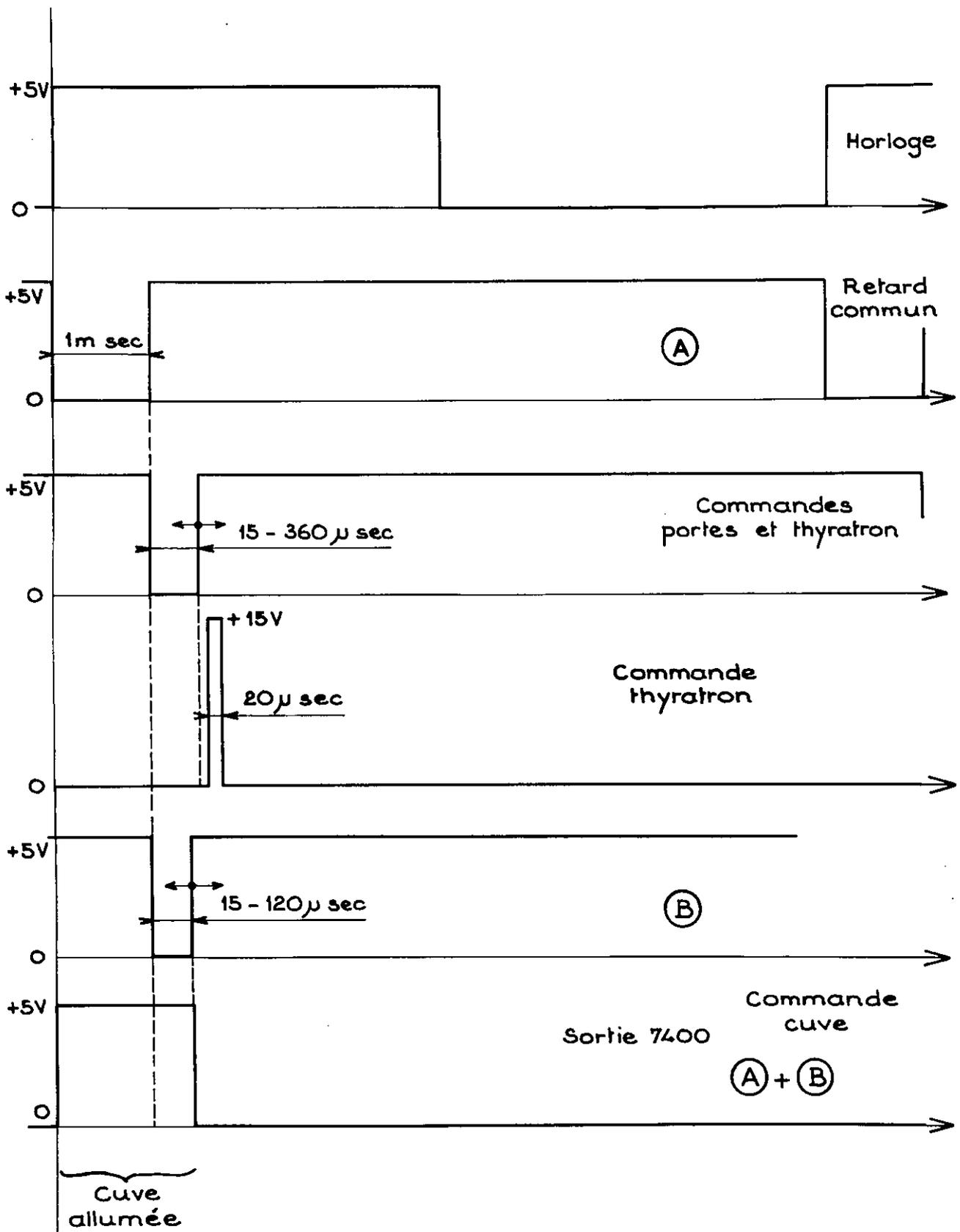
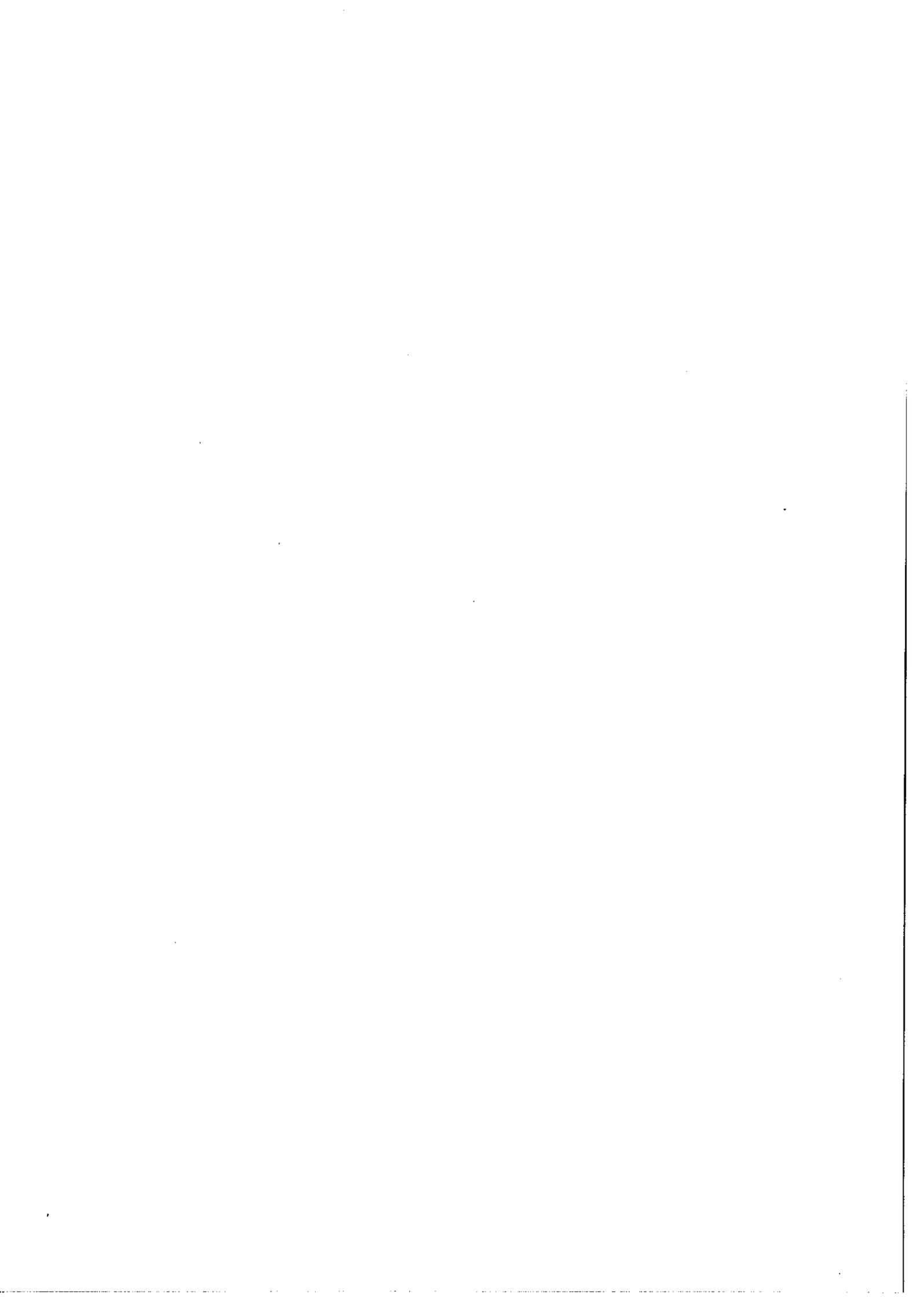


Figure 30

Séquence des signaux de commande.



cuve. Un atténuateur permet d'opérer en flux faible non saturant et de plus nous nous sommes placés au sommet du profil d'absorption. On enregistre l'intensité I_t du faisceau après la traversée de la cuve en fonction de Δt et on compare cette intensité à l'intensité incidente I_i . Le rapport des deux mesures donne :

$$\alpha(\chi=0, \Omega=0, \Delta t)l = \text{Log} \frac{I_i}{I_t} \quad (l \text{ est la longueur de la cuve}).$$

La figure 31 reproduit l'évolution de l'absorption en fonction de Δt . La courbe 1 représente en fait le rapport $\rho = \frac{\alpha(0,0,\Delta t)}{\alpha(0,0,0)}$ c'est-à-dire le coefficient d'absorption à l'instant Δt rapporté à sa valeur maximum initiale ($t=0$). La courbe 2 donne la quantité $\text{Log} \frac{1}{\rho}$; si un seul mécanisme de désexcitation de constante de temps θ entre en jeu, $\alpha(0,0,\Delta t) = \alpha(0,0,0) e^{-\frac{\Delta t}{\theta}}$ et cette courbe est une droite de pente $\frac{1}{\theta}$. Comme on peut le voir sur la courbe 2, les points expérimentaux sont approximativement alignés pour $\Delta t \gg 120 \mu\text{sec}$. et donnent pour la constante de désexcitation $\theta \approx 200 \mu\text{sec}$. On peut considérer qu'alors les chocs avec les impuretés (atomes ou molécules) sont la principale cause de désexcitation du métastable. Les chocs entre atomes de baryum avec transfert d'énergie vers les niveaux 3D situés plus bas peuvent également jouer un rôle. Les chocs baryum-gaz porteur (ici du néon) ne peuvent conduire à des transferts d'énergie (le niveau métastable est d'énergie bien inférieure à celle des niveaux les plus bas du néon) et étant donné le diamètre élevé de la cuve (20 mm) la désexcitation par choc sur les parois est négligeable. Le temps de transit T vers les parois est bien supérieur à la constante θ mesurée ; l'ordre de grandeur de T est donné par la relation $T = \frac{\Phi^2}{4\lambda v}$ (voir Chapitre IV)

où Φ est le diamètre de la cuve, λ le libre parcours moyen et \bar{v} la vitesse moyenne des atomes de baryum à la température de l'expérience (environ 900°K) ; on trouve $T \approx 11$ msec. (pression du gaz porteur, ici du néon : ~ 3 mm).

Pendant la période allant de 10 à 120 μ sec. les points ne sont pas alignés. Ceci traduit l'existence de plusieurs mécanismes de désexcitation. Ils s'expliquent par la présence d'ions et d'électrons qui proviennent de la période d'excitation de la cuve et dont la recombinaison n'est pas encore terminée (pendant cette période il peut y avoir aussi création d'atomes sur le niveau métastable). Nous n'avons pas précisé la courbe pour la période $0 \leq \Delta t \leq 10$ μ sec. . Pendant cette période en effet l'émission spontanée globale n'est pas terminée (effets de cascades). A l'aide d'un détecteur rapide nous avons observé un temps d'extinction de l'émission spontanée de l'ordre de 4 μ sec. .

Finalement si on considère globalement la courbe $\rho(\Delta t)$, la constante de temps correspondant à $\frac{1}{e}$ de l'absorption relative maximum est $\theta_1 = 65$ μ sec. . Mais en fait cette valeur correspond à la superposition des effets de différents mécanismes et la seule grandeur significative est donnée par la partie linéaire de la courbe 2. La constante mesurée θ correspond seule au temps de relaxation du métastable en l'absence d'excitation ; elle dépend beaucoup de la pureté du mélange gazeux.

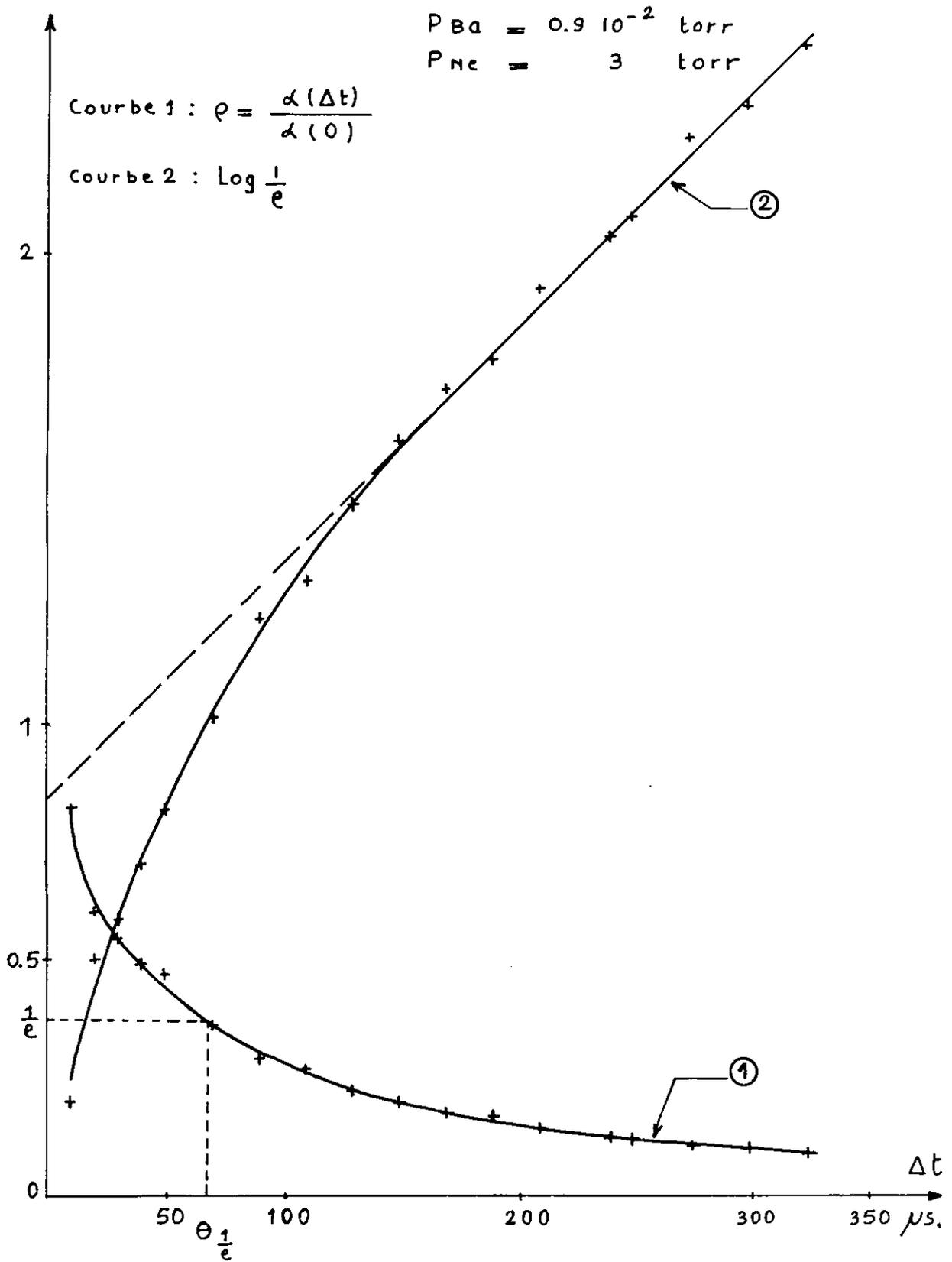
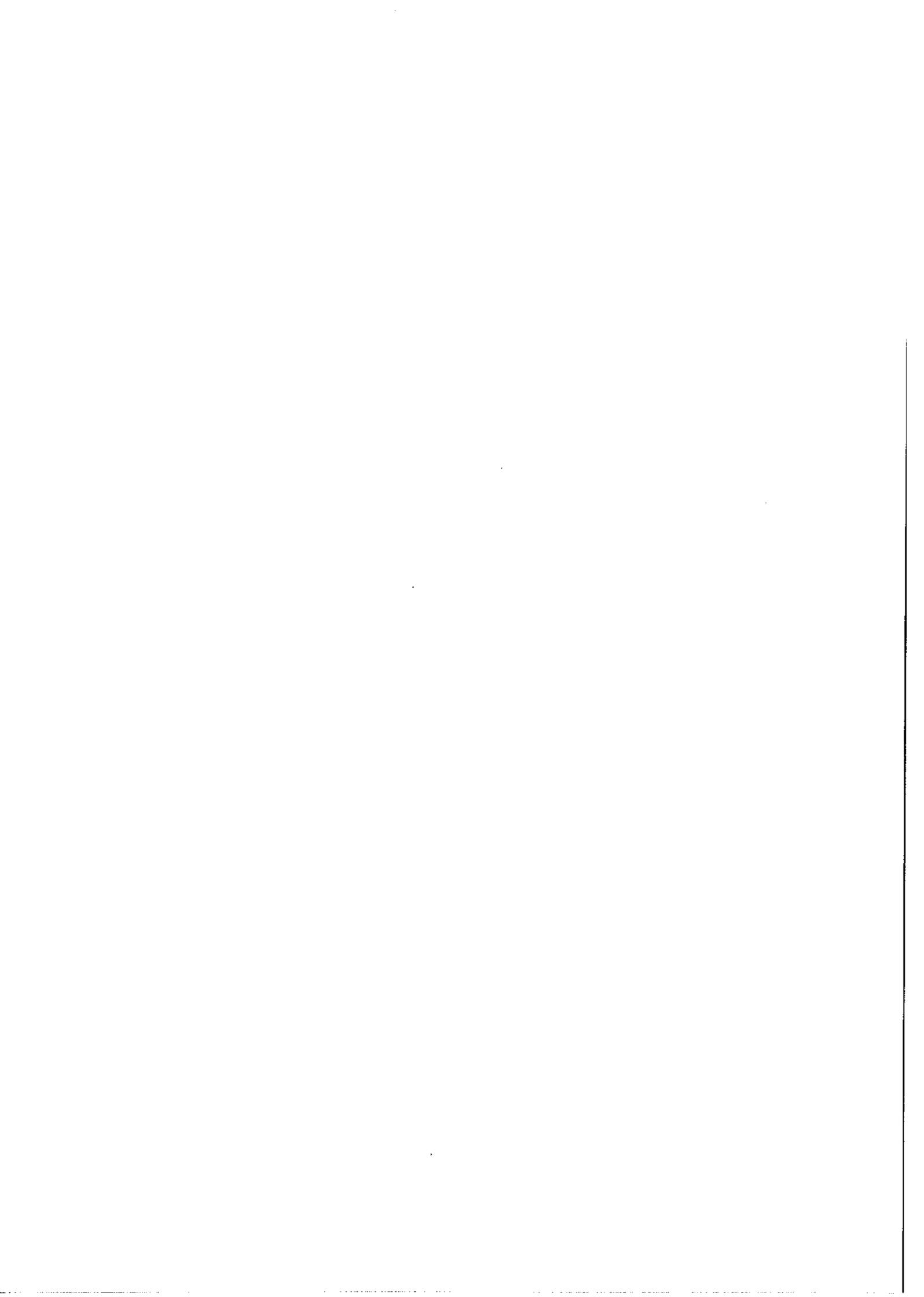


Figure 31

Relaxation du niveau métastable 1D_2 en l'absence d'excitation de la cuve.



c) MESURE DU PARAMETRE DE SATURATION.

Lors de l'analyse des enregistrements effectués, il est important de connaître la valeur du paramètre de saturation χ . En effet, nous avons vu que les intensités relatives des composantes hyperfines dépendent du degré de saturation. De plus la largeur des pics de résonance est en partie due à l'élargissement par saturation qui est en valeur relative de l'ordre de $\frac{1 + \sqrt{1+\chi}}{2}$.

Nous avons opéré de la façon suivante. La fréquence du laser coïncidant approximativement avec le centre du profil d'absorption on mesure d'abord l'absorption relative du faisceau sonde après une seule traversée de la cuve, c'est-à-dire le rapport

$$\left(\frac{I_i - I}{I_i} \right)_1 = 1 - e^{-\alpha(\chi_1, \Omega=0)\ell} \quad (\ell \text{ longueur de la cuve et } I_i \text{ intensité incidente}).$$

On effectue une seconde mesure en atténuant le faisceau saturant dans un rapport connu ρ à l'aide d'un atténuateur

$$\text{calibré : } \left(\frac{I_i - I}{I_i} \right)_2 = 1 - e^{-\alpha(\chi_2, \Omega=0)\ell} \quad . \text{ Afin d'opérer à niveau constant sur le détecteur, l'atténuateur calibré (par la mesure de l'atténuation qu'il produit sur } I_i) \text{ est placé après la cuve lors de la première mesure puis devant la cuve lors de la seconde mesure. On s'affranchit ainsi d'une éventuelle non linéarité du système de détection dont l'effet ne se répercute que dans le calibrage de l'atténuateur.}$$

Le coefficient d'absorption en champ saturant est relié de façon simple au coefficient d'absorption en champ faible :

$$\alpha(\chi, 0) = \frac{\alpha(0, 0)}{\sqrt{1+\chi}}$$

En absorption faible, le rapport des deux mesures précédentes donne

$$y = \left(\frac{I_i - I}{I_i} \right)_1 \bigg/ \left(\frac{I_i - I}{I_i} \right)_2 \# \frac{\alpha(\chi_1, \Omega=0)}{\alpha(\chi_2, \Omega=0)} \# \sqrt{\frac{1+\chi_2}{1+\chi_1}}$$

Par ailleurs χ est proportionnel à l'intensité du champ :

$$\frac{\chi_1}{\chi_2} = \rho$$

d'où

$$\chi_1 = \frac{\rho(y^2 - 1)}{1 - \rho y^2}$$

Cette relation permet de "calibrer" l'intensité I_i du laser en terme de paramètre de saturation. Avec notre source laser grâce à la concentration du faisceau dans la cuve nous pouvons obtenir facilement des valeurs de χ de l'ordre de quelques unités pour le centre du profil laser.

De la connaissance du paramètre de saturation on peut déduire une valeur approchée de la puissance émise par le laser. En effet de l'expression du paramètre :

$$\chi = \frac{\mathcal{P}^2 E^2}{2\pi^2 \gamma_{ab}} \left(\frac{1}{\gamma_a} + \frac{1}{\gamma_b} - \frac{\beta_{ab}}{\gamma_a \gamma_b} \right)$$

on déduit, en négligeant l'émission spontanée et en supposant $\gamma_{ab} \# \frac{\gamma_a + \gamma_b}{2}$ avec, pour la transition du baryum $\gamma_a \gg \gamma_b$ (a pour le niveau résonant 1P_1 , b pour le métastable 1D_2) :

$$\chi \# \frac{\mathcal{P}^2 E^2}{\pi^2 \gamma_a \gamma_b}$$

La puissance émise par le laser est $P = \frac{CE^2}{8\pi}$ (unités c.g.s. u.e.s.)

et on a $\mathcal{P}^2 = \frac{1}{3} g_{^1P_1} A_{ab} \frac{3h\lambda^3}{64\pi^4}$.

La valeur de A_{ab} déduite de la force de raie [53] donne $A_{ab} = 1,1 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$. La difficulté est l'évaluation de $\frac{1}{\gamma_b} = \tau_b$ durée de vie du métastable lorsque la cuve est allumée : τ_b est certainement très inférieure à la constante θ mesurée en l'absence d'excitation (et inférieure à θ_1) et sensiblement supérieure au temps de disparition de la transparence induite mesurée au Chapitre IV. Un ordre de grandeur raisonnable peut être $\tau_b \approx 10 \mu\text{sec}$. La constante $\frac{1}{\gamma_a}$ est à peu près la durée de vie radiative du niveau résonant. On trouve finalement qu'une saturation de l'ordre de l'unité ($\chi=1$) correspond à une puissance laser de $3 \mu\text{Watt/mm}^2$. Cette valeur serait à comparer à la puissance crête du laser mais la mesure directe de cette puissance, très faible et émise pendant une durée très courte (quelques dizaines de nano secondes), est délicate et peu précise.

D) PREPARATION DU BARYUM ISOTOPIQUE.

A cause de l'oxydation rapide du métal lorsqu'il est au contact de l'air, les isotopes de baryum enrichi sont fournis sous la forme stable de nitrate de baryum ou de carbonate de baryum par le Laboratoire d'Oak-Ridge (U. S. A.). Inutilisable sous cette forme, pour des expériences d'absorption, le produit doit être transformé en métal et sa grande réactivité chimique rend l'opération délicate.

Parmi les divers procédés possibles nous avons utilisé la distillation sous vide d'un amalgame de baryum et de mercure. Ce procédé, connu depuis longtemps [64] peut donner un excellent rendement [65]. Ce point est essentiel puisque nous devons opérer sur des quantités limitées d'isotopes purs.

Les opérations se déroulent en deux temps :

- on forme l'amalgame avec le mercure en passant par l'intermédiaire du chlorure de baryum que l'on électrolyse. Cette opération a été effectuée avec un excellent rendement dans les laboratoires du C. E. A. de Fontenay-aux-Roses ⁽¹⁾.

- nous avons nous-même procédé à la distillation sous vide de l'amalgame à l'aide de l'appareil représenté sur la figure 32. Il est constitué d'une enceinte en pyrex comprenant un piège refroidi à l'azote liquide. Une petite nacelle en acier inoxydable permet de recueillir le baryum métallique. La première opération consiste à dégazer soigneusement cette enceinte, en particulier la partie contenant la nacelle. Pour cela, cette partie est chauffée à environ 500°C pendant plusieurs heures grâce au four électrique. On maintient constamment un vide secondaire dans l'enceinte. On introduit ensuite l'amalgame dans la nacelle par le tube T ; cette opération s'effectue à froid sous atmosphère d'argon, puis le tube T est scellé. On peut alors procéder, une fois l'enceinte à nouveau sous vide secondaire dynamique, à la distillation proprement dite. On augmente très progressivement la température jusqu'à ébullition lente de l'amalgame. La résistance chauffante évite la condensation du mercure hors de la zone refroidie. On doit opérer très lentement pour éviter toute projection d'amalgame hors de la nacelle. Cette dernière contient environ 5 cm³ d'amalgame (100 mg de baryum). La distillation dure une dizaine d'heures. Après refroidissement on transfère la nacelle sous atmosphère d'argon dans

(1) Travail effectué par Melle Petit et Mme Duvet sous la direction de M. Molina.

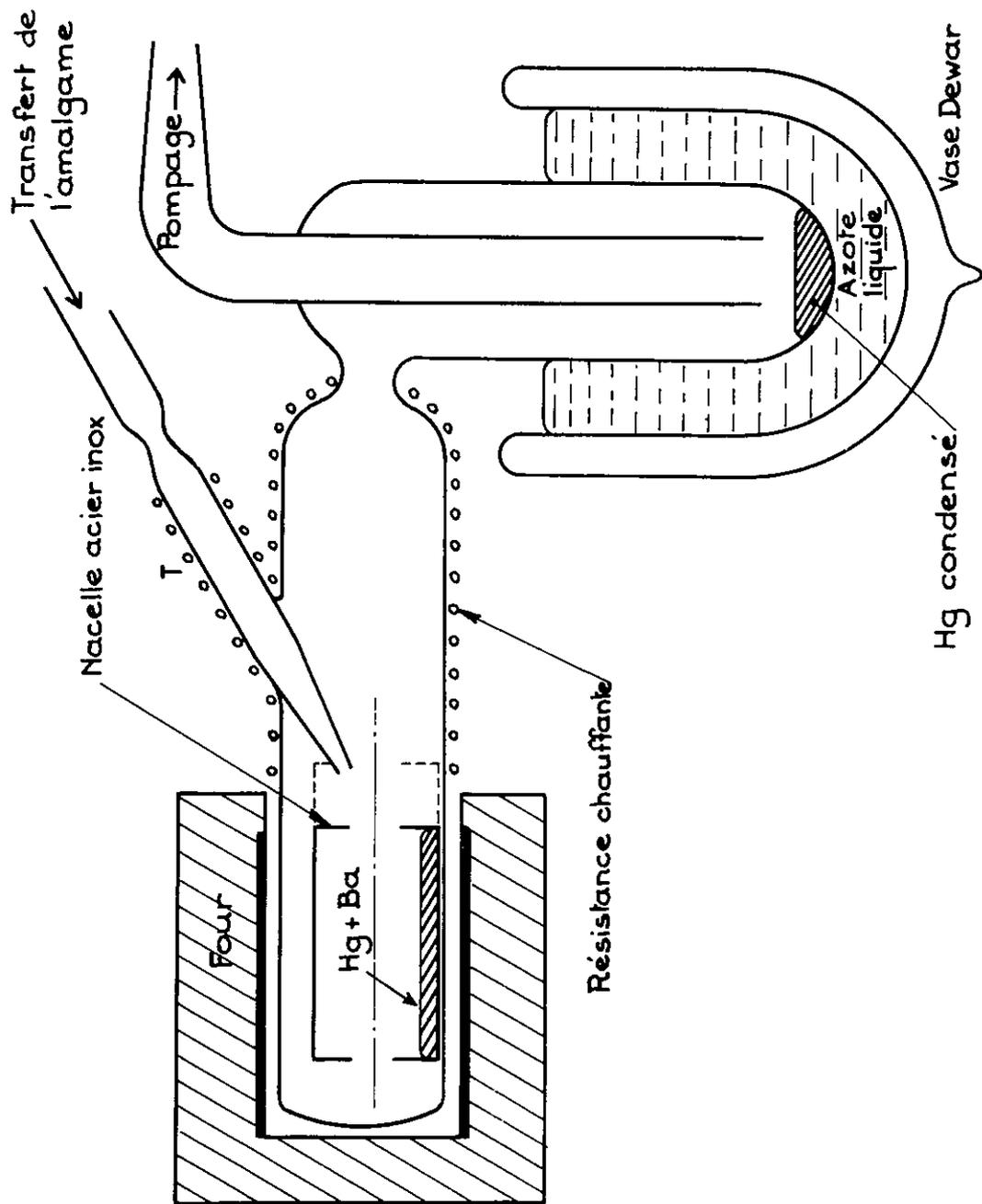
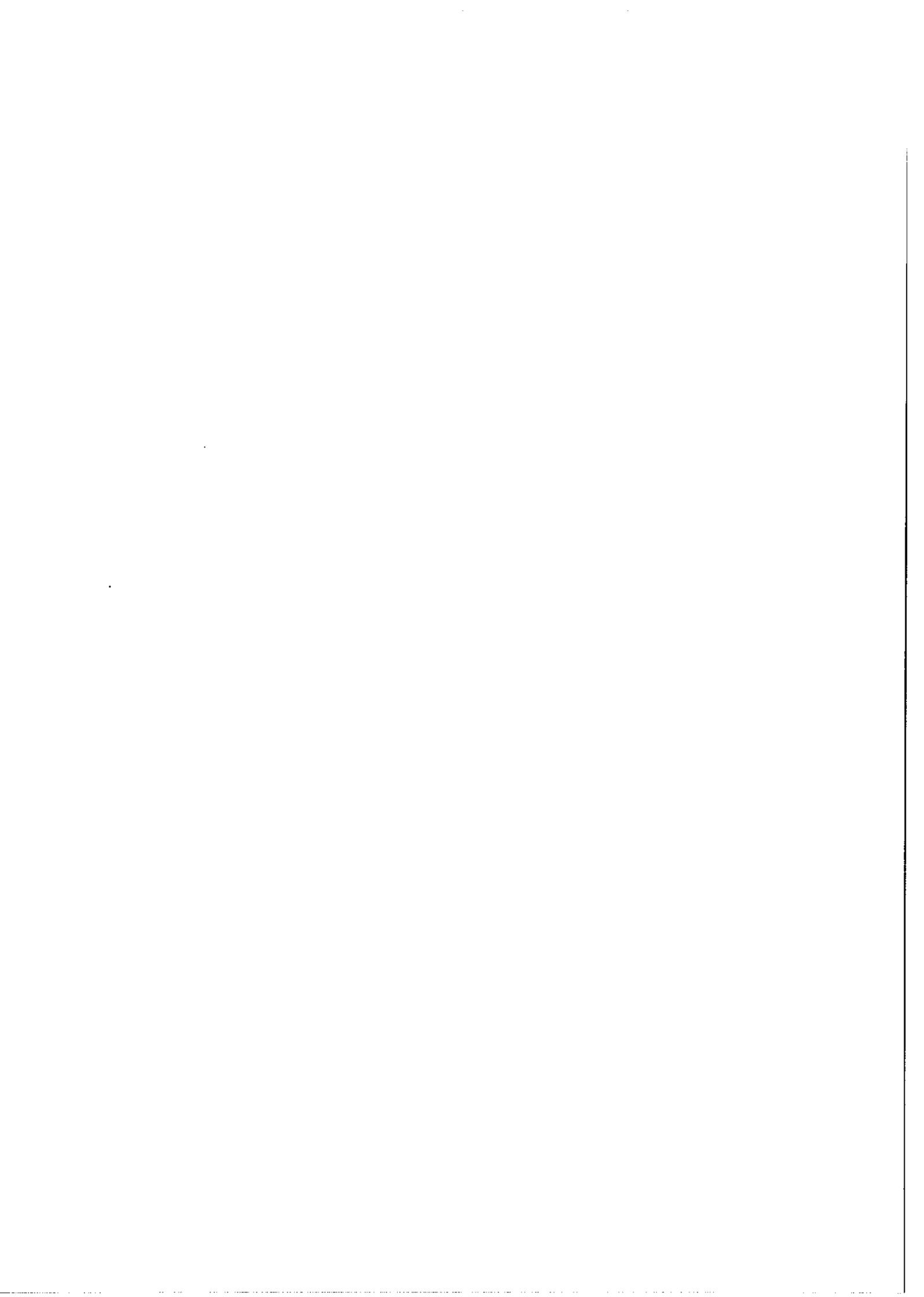


Figure 32

Appareil utilisé pour la distillation de l'amalgame. Dimensions de la nacelle cylindrique : diamètre extérieur 19 mm, diamètre des ouvertures extrêmes 8 mm, longueur 70 mm.



la cuve préalablement dégazée et mise sous vide immédiatement après le transfert. De cette manière le métal ne s'oxyde pas.

Ces opérations, longues et délicates, permettent d'obtenir le métal relativement pur. Pour 100 mg de baryum initial (sous forme de nitrate) le tube fonctionne environ une vingtaine d'heures. Malheureusement l'examen au spectroscope de la lumière émise par le résidu obtenu montre qu'il contient encore des traces de mercure qu'il semble difficile l'éliminer totalement.

E) ANALYSE DES ENREGISTREMENTS.

Comme le montrent les enregistrements présentés en annexe (fig. 5 et 6 de l'annexe) la structure obtenue comporte trois composantes non complètement résolues. L'analyse du profil enregistré a été considérablement compliquée pour les raisons suivantes :

- La plage spectrale balayée en mode unique par le laser s'est révélée insuffisante pour enregistrer l'ensemble de la structure. Bien que le domaine exploré par le laser soit du même ordre de grandeur que l'étendue globale de la structure, il n'est pratiquement utilisable que dans la région centrale, qui correspond seule à une intensité suffisante. De plus, par suite de l'écart entre les isotopes 137 et 138, le profil d'émission laser n'est pas "centré" sur le profil d'absorption du ^{137}Ba . L'emploi d'isotope 137 pour le laser lui-même aurait été souhaitable mais nous avons dû y renoncer par suite des problèmes posés pour l'obtention d'isotopes purs sous forme métallique.

- Pour obtenir un bon rapport Signal/bruit nous avons dû opérer en

saturation forte ce qui conduit à un élargissement notable des pics de résonance que nous n'avons pu résoudre individuellement. De ce fait nous n'avons pu préciser la part des résonances parasites dans le profil enregistré. Par ailleurs l'hétérogénéité du milieu absorbant conduit à des coefficients d'absorption légèrement différents pour les deux faisceaux sondes, même en l'absence de saturation. Nous n'avons pu éliminer complètement ce défaut, mais seulement le réduire en choisissant une cuve de diamètre bien supérieur à l'écart entre les deux faisceaux (et à leurs dimensions). Il en résulte que le "zéro" de l'enregistrement est assez mal déterminé ce qui complique encore le problème des intensités relatives, notamment dans le cas d'une saturation très faible (voir en annexe p. 576), domaine où elles sont le plus affectées (figure 33).

- Enfin l'isotope 137 fourni par Oak-Ridge contient encore 10% environ d'isotope 138 . L'intensité de la composante supplémentaire qui en résulte ne peut être négligée et nous avons dû déterminer sa position à partir d'expériences préliminaires effectuées en baryum naturel puis en baryum 138 pur.

En définitive pour interpréter la structure enregistrée nous disposons de mesures précises effectuées par d'autres auteurs sur le niveau supérieur résonant 1P_1 [65-68] et de calculs a priori effectués au laboratoire par G. Couarraze [68] à l'aide de la méthode du potentiel paramétrique [69]. Nous avons comparé la structure théorique déduite de ces résultats à nos enregistrements. Cette comparaison nous a permis de proposer comme interprétation celle présentée dans

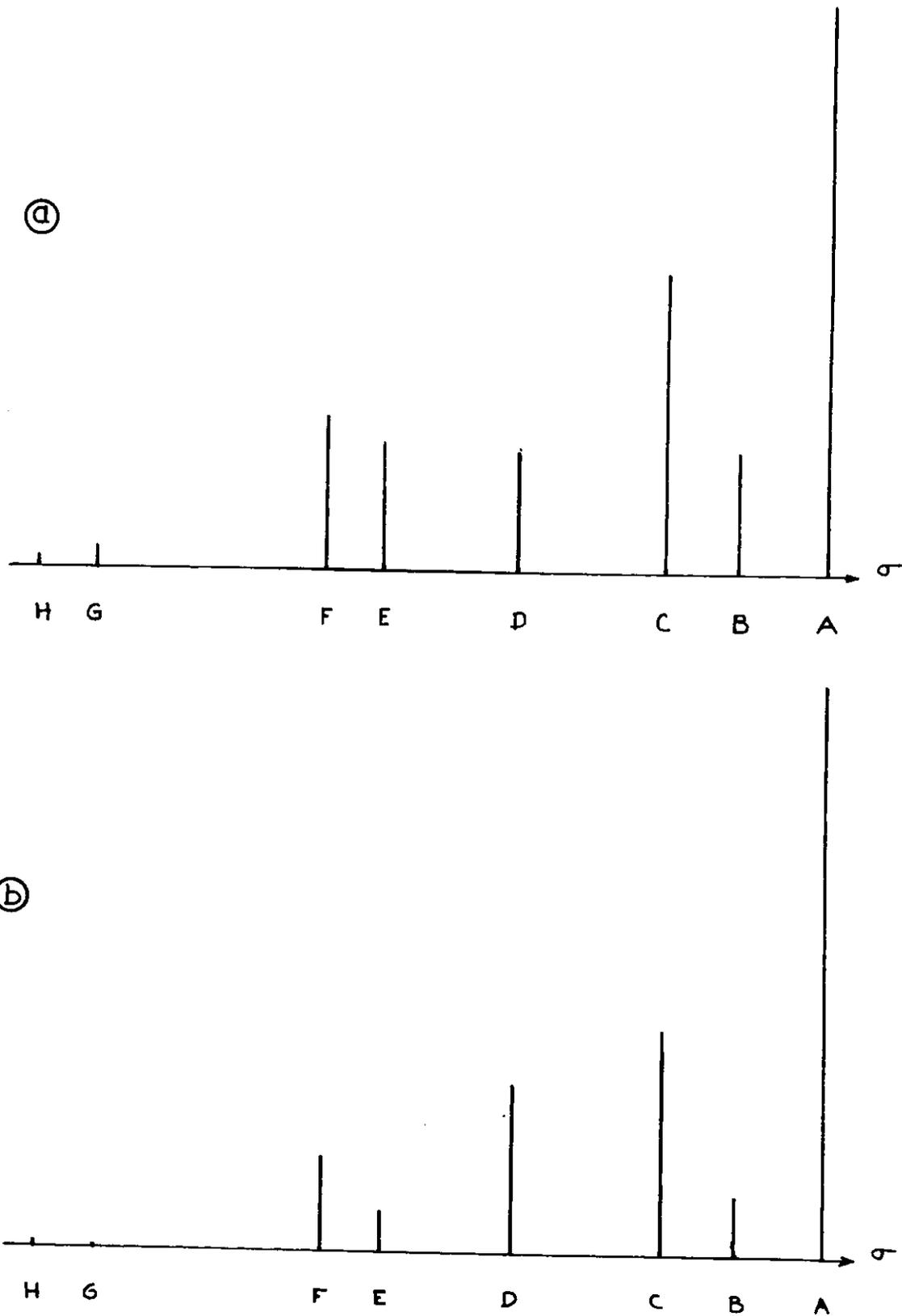
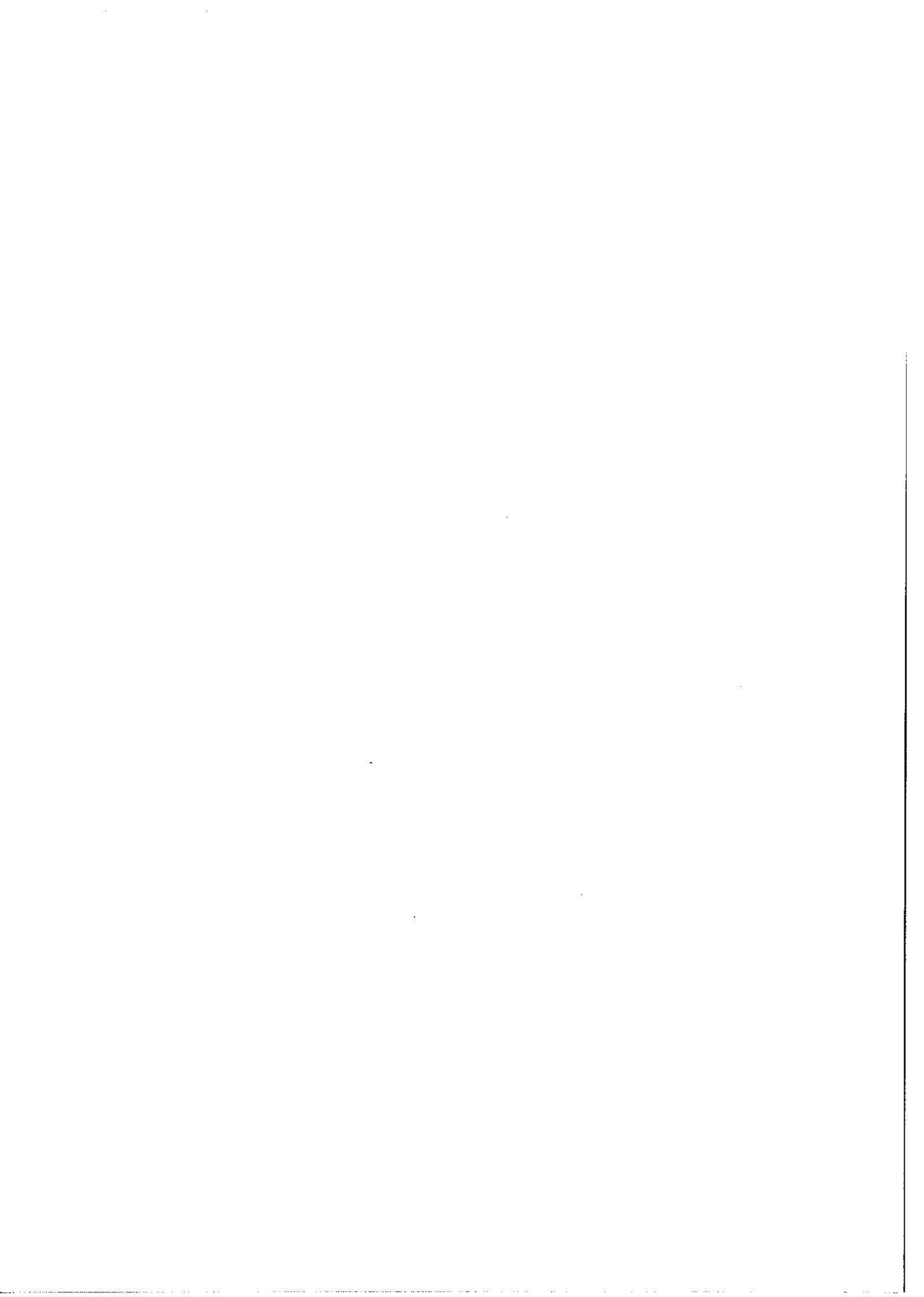


Figure 33

Exemple de modification des intensités relatives d'un multiplet dans le cas d'une saturation très faible.
 Raie du ^{137}Ba à $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$.
 Intensités relatives théoriques en absorption normale (a) et en absorption saturée pour $\chi \ll 1$ (b). On n'a pas représenté les résonances parasites possibles.



l'annexe. Un programme de reconstitution de profils mis au point au laboratoire par Luc [70] donne alors les valeurs des constantes de structure hyperfine correspondantes pour le niveau métastable 1D_2 . Ces valeurs sont en bon accord avec celles calculées par Couarraze. Les incertitudes sont dues essentiellement au manque de précision sur les intensités relatives des composantes.

Note : Une mesure toute récente effectuée par Schmelling ⁽¹⁾ par une méthode de résonance magnétique dans un jet atomique à vapeur de baryum naturel a donné des résultats quelque peu différents (voir tableau). Cet auteur a du reste mesuré également la structure hyperfine des $^3D_{2,3}$. L'ensemble des résultats est résumé dans le tableau suivant (isotope 137 du baryum ; les constantes sont exprimées en mK)

	Couarraze	Schmelling	nos mesures
1D_2 { A	- 3,1	- 2,739	- 3,3
{ B	0,59	1,985	0,7
3D_2 { A	14	13,79	
{ B	0,62	0,893	
3D_3 { A		15,18	
{ B		1,2	

(1) S. G. Schmelling, Université de New York (Buffalo) - communication personnelle.

On voit que si l'accord est bon entre les valeurs théoriques et les mesures de Schmelling pour le 3D_2 , il n'en est pas de même pour le 1D_2 . Pour ce niveau nos mesures sont en meilleur accord avec les prévisions théoriques que celles de Schmelling.

Pour améliorer la précision de nos mesures et lever toute ambiguïté sur l'interprétation de la structure obtenue par cette méthode, la seule voie possible semble être une augmentation de la plage spectrale balayée par le laser source de façon à enregistrer l'ensemble de la structure ainsi qu'une augmentation de la résolution. Pour cela il est nécessaire de disposer d'un laser source fonctionnant en continu avec une très bonne stabilité pour opérer à saturation faible et de fréquence finement ajustable, mais dans le domaine spectral qui nous intéresse (proche infrarouge) cette source idéale n'existe pas encore.

CHAPITRE IV

SATURATION DE L'ABSORPTION D'UN MILIEU PAR UNE IMPULSION BREVE.ETUDE DE LA DISPARITION DE LA TRANSPARENCE.

Dans la partie théorique nous avons montré que la saturation de l'absorption se traduit, pour le signal de saturation, par une résonance étroite dont le profil est approximativement lorentzien. La faible largeur de la résonance permet un gain en résolution appréciable par rapport aux méthodes classiques où l'effet Doppler intervient et c'est cette intéressante propriété que nous avons utilisée dans l'expérience précédente. L'analyse du profil de la résonance, pour un isotope pur sans structure, présente au moins un double intérêt. Elle permet de "tester" la validité des approximations faites dans le traitement théorique ; elle permet aussi d'étudier par exemple les effets des collisions sur le profil. Dans ce chapitre c'est à ce dernier aspect que nous allons nous intéresser ; sous l'influence des collisions, les raies spectrales sont élargies et déplacées et l'étude de ces effets prend une importance de plus en plus grande en spectroscopie atomique.

L'élargissement par pression que l'on peut mesurer sur l'enregistrement du profil d'absorption saturée, traduit l'effet global des collisions. Cette mesure est rendue délicate par les nombreuses causes de perturbation du profil : effets de cohérence, effet Doppler résiduel dû à la convergence des faisceaux, effets des collisions élastiques, etc... La méthode que nous proposons ici et dont nous présentons les premiers résultats est une étude en dynamique des effets des collisions. Elle présente l'avantage d'être plus directe qu'une étude de profils ; elle met à profit le fonctionnement en impulsions de la source laser et le caractère sélectif en vitesse (longitudinale) de la saturation de l'absorption par une onde monochromatique. Comme pour notre étude de structure hyperfine, elle a été mise au point sur la transition du baryum à $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$. Son principe est le suivant.

Considérons un milieu absorbant à deux niveaux a et b correspondants à une transition de fréquence ω_{ab} . Avec les notations du Chapitre II, en régime permanent, la différence de population des niveaux est

$$\Delta n_{ab0}(v) = \left[\frac{\lambda_a}{\gamma_a} \left(1 - \frac{\beta_{ab}}{\gamma_b} \right) - \frac{\lambda_b}{\gamma_b} \right] \frac{1}{\sqrt{\pi}v_0} e^{-\left(\frac{v}{v_0}\right)^2}$$

On soumet ce milieu à une impulsion lumineuse brève et intense. Cette impulsion est supposée monochromatique c'est-à-dire, en ce qui nous concerne, de largeur spectrale bien inférieure à la largeur homogène de la transition et de fréquence voisine de ω_{ab} . Il s'établit un certain état de saturation qui se traduit par une perturbation locale dans le profil de répartition des vitesses longitudinales des atomes effectuant la transition. Une fois l'excitation optique terminée, les

différents processus d'excitation et de relaxation tendent à faire disparaître la perturbation par redistribution des vitesses suivant une répartition de Maxwell. Si l'on est capable d'analyser l'état de saturation de l'absorption du milieu au cours du temps, on doit observer une augmentation du coefficient d'absorption $\alpha_t(\Omega, \chi)$ qui passe de la valeur saturée $\frac{\alpha(0,0)}{\sqrt{1+\chi}}$ à la valeur non saturée $\alpha(0,0)$ pour le centre du profil : il y a disparition au cours du temps de la "transparence" du milieu induite par l'impulsion saturante. La constante de temps que l'on peut déduire de $\alpha_t(\Omega, \chi)$ traduit l'effet des collisions. Il faut noter que par suite du caractère sélectif en vitesse de l'excitation l'effet des collisions élastiques modifiant la vitesse des atomes sans modifier leur état va jouer un rôle au même titre que celui des collisions inélastiques. Enfin dans le cas de la transition du baryum qui nous intéresse, le niveau supérieur résonant a une durée de vie très brève devant celle du niveau inférieur et devant le temps moyen entre deux collisions pour les pressions auxquelles nous avons travaillé : on peut s'attendre à observer essentiellement l'évolution du niveau métastable.

A) MONTAGE EXPERIMENTAL.

Dans notre montage, l'absorbant est un tube à décharge à vapeur de baryum (et contenant encore un gaz porteur à plus forte pression) excitée par un courant continu. Un laser oscillant en impulsions sur la raie $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$ produit les impulsions de saturation. Un dispositif optique particulier fournit en fait, à partir de chaque impulsion

laser une première impulsion intense puis, décalées dans le temps, une succession d'impulsions secondaires d'intensités faibles qui vont servir à analyser l'évolution de la saturation.

La figure 34 schématise le dispositif expérimental dont une vue d'ensemble est donnée par la figure 35. A quelques différences près dans les dimensions des tubes à décharge (laser et cuve) la plupart des éléments du montage ont déjà été décrits à propos de l'expérience précédente.

Le laser source correspond à la cavité de 39 cm de longueur. Cette dimension plus importante du laser nous permet de travailler avec un faisceau plus large que dans l'étude de la structure hyperfine pour une même densité d'énergie dans la cuve donc pour une même saturation (le diamètre du faisceau au centre de la cuve est d'environ 0,8 mm). Ce point est important pour limiter les effets de migration des atomes (paragraphe B).

La cuve à absorption n'est plus traversée que par un seul faisceau. Nous avons réduit son diamètre interne à 5 mm. Sa longueur active est de 25 cm.

Le Fabry-Perot sphérique multipassages, utilisé dans l'expérience précédente pour calibrer la fréquence du laser, sert maintenant seulement à nous repérer dans le profil d'émission du laser.

La partie nouvelle concerne le dispositif optique servant à obtenir des impulsions retardées par rapport à l'impulsion saturante ainsi que le système de détection électronique.

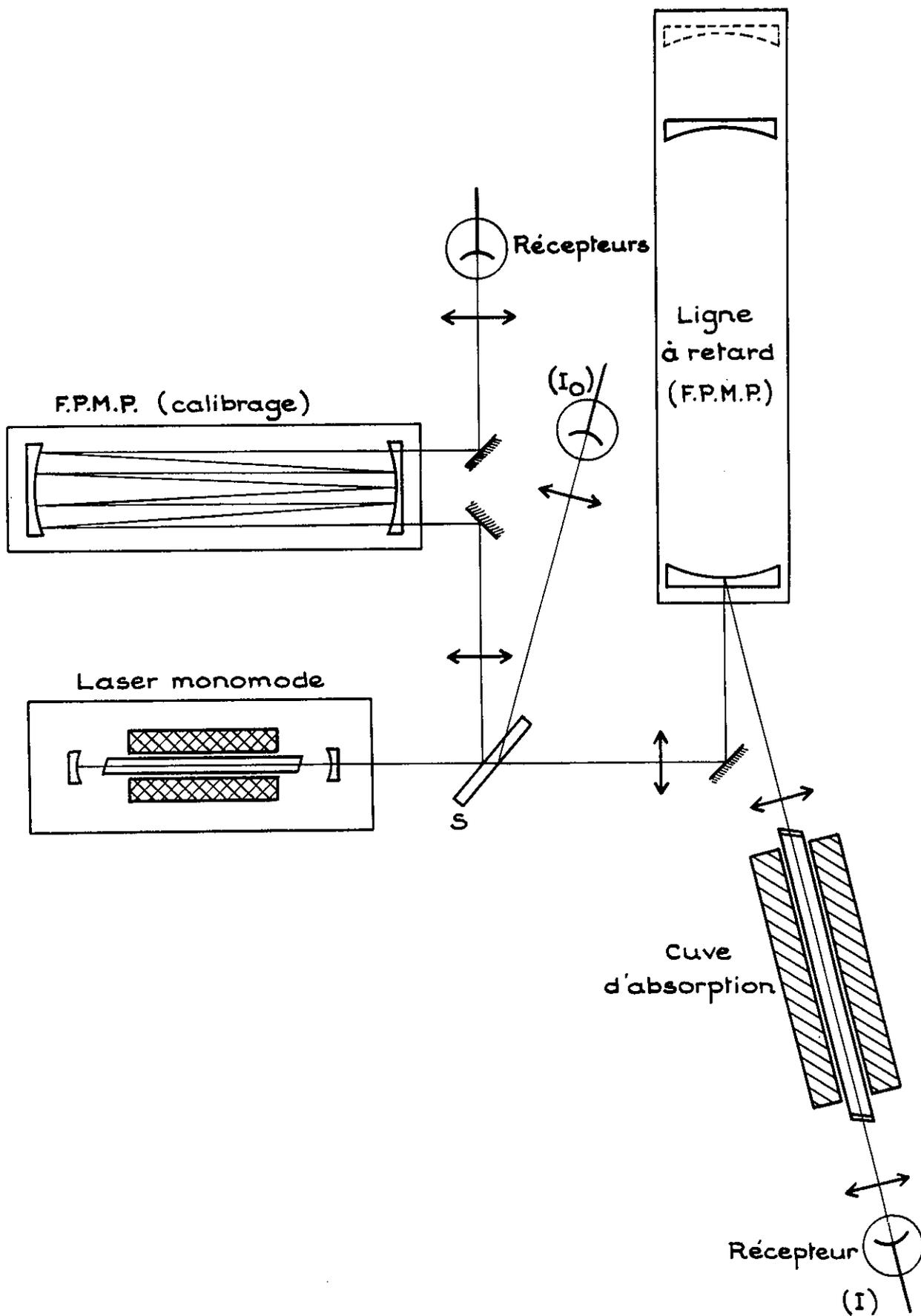


Figure 34

Schéma simplifié du montage expérimental.

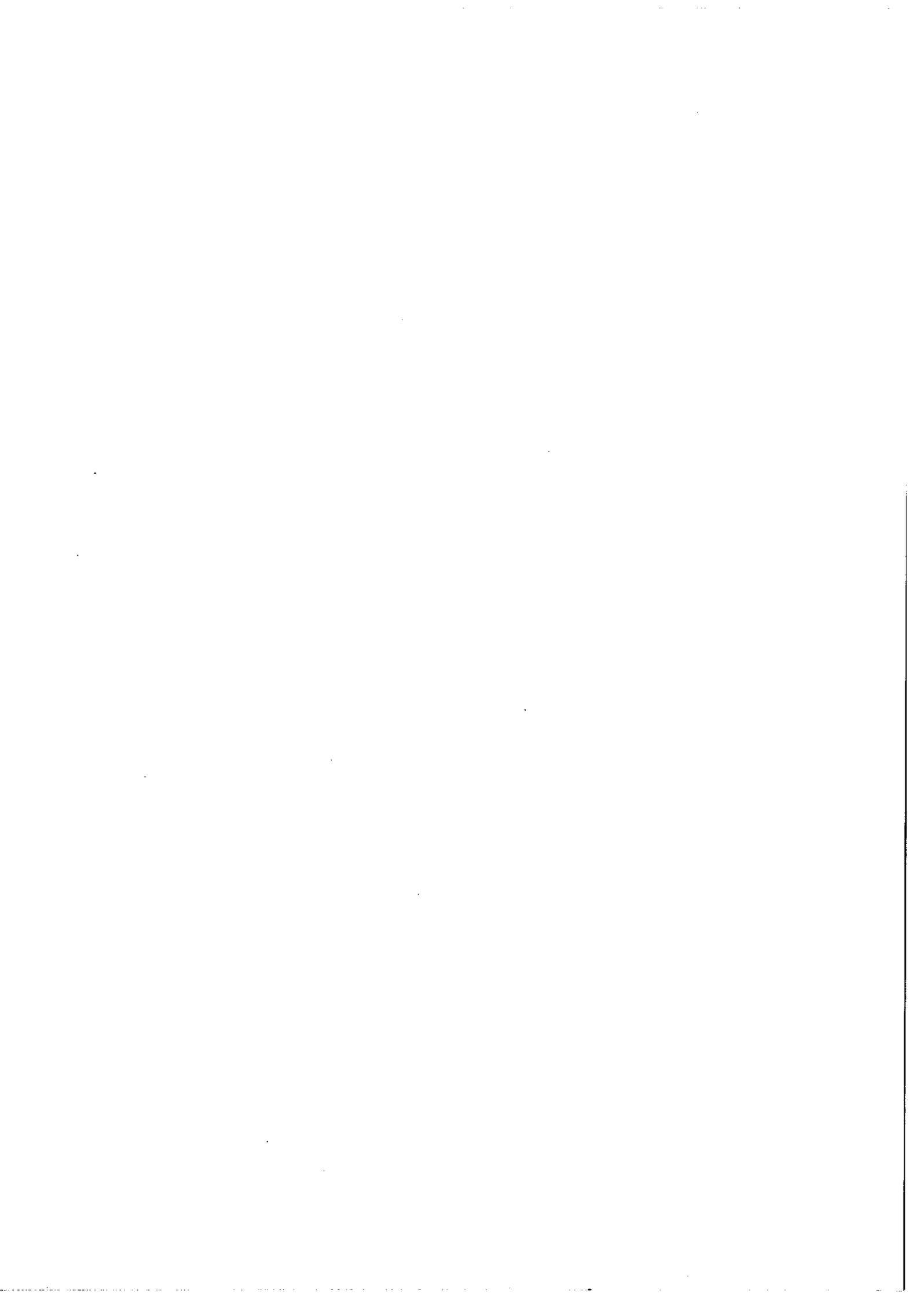
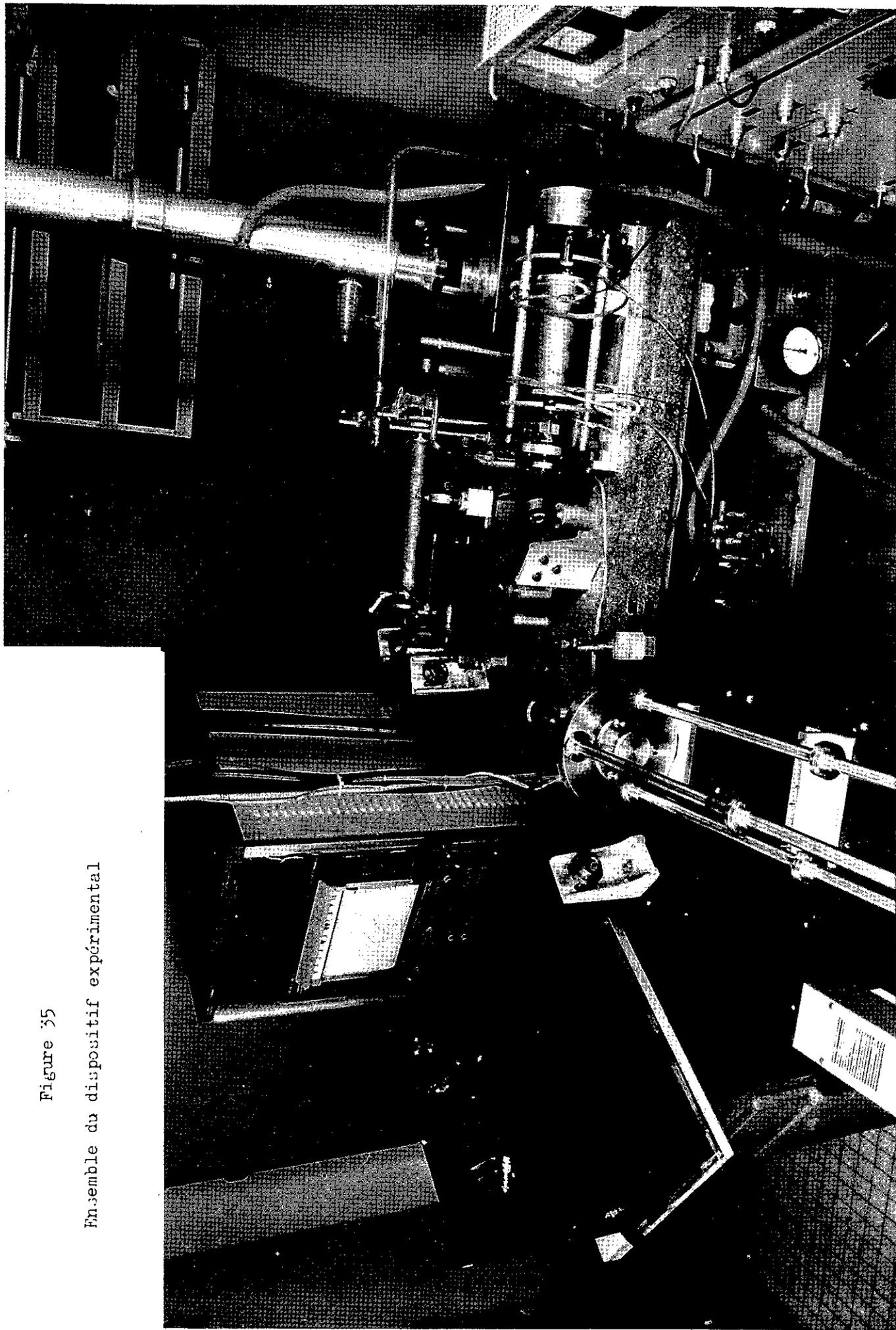
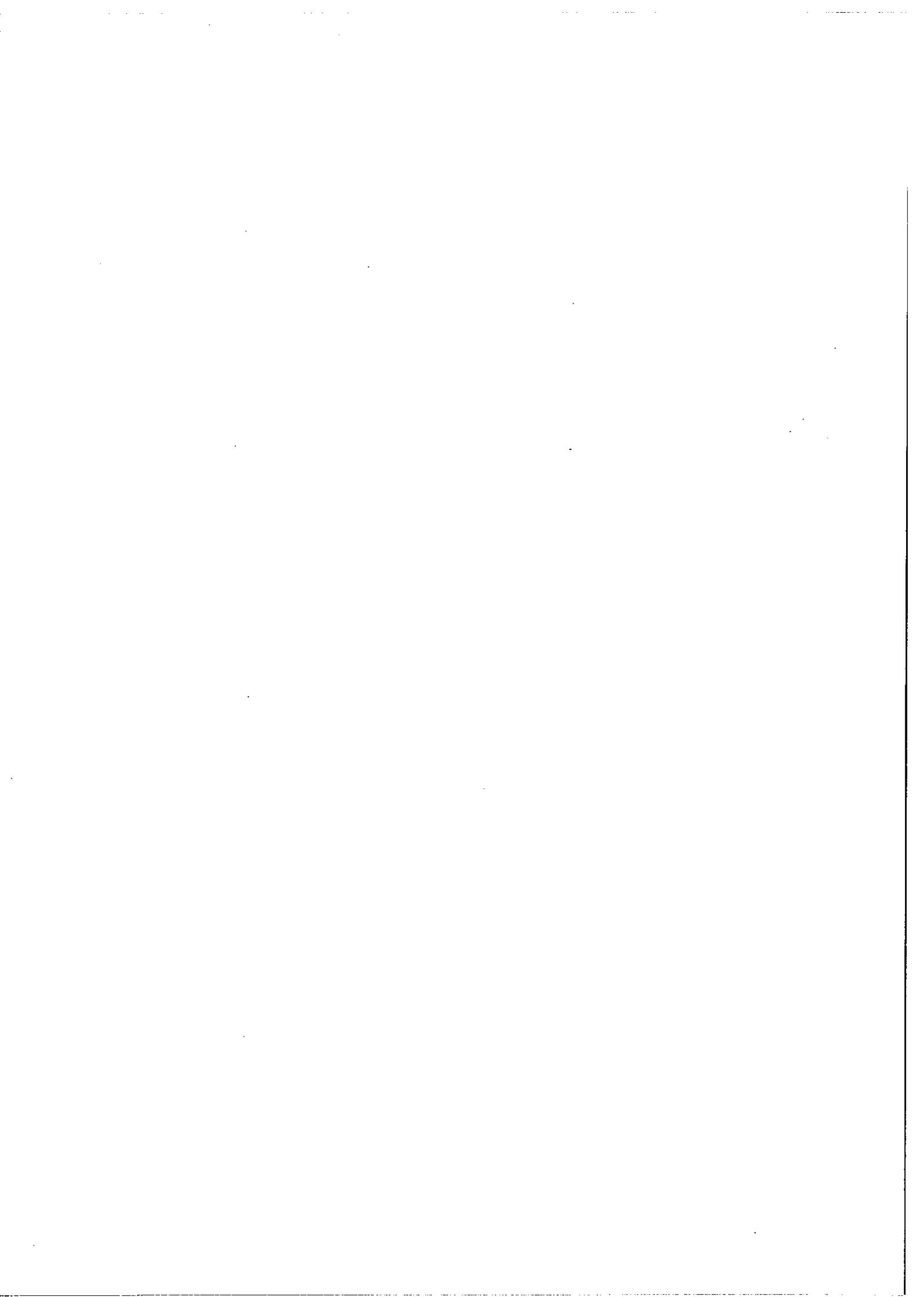


Figure 35

Ensemble du dispositif expérimental





1. LIGNE A RETARD OPTIQUE.

Il s'agit en fait d'un Fabry-Perot multipassage utilisé en réflexion et dont le temps de parcours total par la lumière est supérieur à la durée de l'impulsion laser. Les propriétés de ce dispositif ont été décrites dans l'appendice de la première partie. A partir d'une impulsion incidente le système fournit une impulsion saturante provenant de la réflexion directe sur le secteur entrée-sorties (figure 1A) et une suite d'échos correspondants aux ondes émergentes successives. Le retard entre deux échos successifs est :

$$\Delta t = \frac{2ND}{C}$$

(D distance entre miroirs et N nombre de doubles passages).

Les intensités relatives des différents signaux dépendent de N mais aussi des pouvoirs réflecteurs r et R (secteur d'entrée et coefficient de réflexion maximum pour les autres réflexions respectivement). Nous avons utilisé une configuration à 11 double-passages pour des miroirs distants de 4,08 mètres. Le retard Δt est alors de 299 nsec. . Le choix de cette valeur de Δt est un compromis qui résulte du calcul du temps moyen entre deux chocs donné par la théorie cinétique des gaz (paragraphe B) et de la durée finie de l'oscillation laser. Les valeurs des pouvoirs réflecteurs ($r \# 0,67$ et $R \# 0,99$) conduisent à un rapport 2 environ entre les intensités de deux échos successifs ; l'intensité du premier écho représente 14% environ de l'intensité du faisceau saturant. Cette valeur est un peu élevée pour pouvoir négliger l'effet d'une petite saturation par les faisceaux sondes (du moins pour le premier d'entre eux). Elle a été cependant nécessaire dans nos

premiers essais afin d'obtenir un bon rapport Signal/bruit pour les deux (ou trois) premiers échos. La figure 36 montre l'aspect des échos obtenus dans ces conditions. Il s'agit du signal donné par le récepteur seul (sans amplificateur), ici une cellule photovoltaïque type In-Sb refroidie, chargée par 50Ω . Sur la photo 36b on distingue bien les six premiers échos (l'amplitude a été multipliée par cinq par rapport à la photo 36a). La photo 36c montre ce qu'il advient pour une impulsion de durée supérieure à Δt : il n'y a interférence entre les ondes émergentes qu'à partir d'un temps $t \gg \Delta t$ après le début de l'impulsion. On distingue bien sur la photo une première zone sans interférence (appelée phase 1 dans l'appendice) et une zone où interfèrent les deux premières ondes (phase 2), ici celle directement réfléchie et celle qui sort après un parcours complet de l'interféromètre (par suite des instabilités diverses l'état d'interférence varie aléatoirement et très vite ; la photo correspond à plusieurs traces successives).

Parmi les procédés possibles pour produire des retards optiques, celui-ci présente trois avantages importants. Si la distance entre miroirs est correcte pour une configuration donnée, le grandissement optique du système est égal à l'unité, autrement dit les faisceaux successifs ont la même étendue spatiale ; ils se recouvrent exactement. De plus pour un couple de miroirs de rayon de courbure donné il existe un grand nombre de combinaisons possibles correspondant chacune à un retard donné. La figure 3A de l'appendice donne une idée des possibilités offertes pour des miroirs de 11,82 de rayon de courbure. Par ce procédé on peut obtenir des retards optiques assez importants pour un

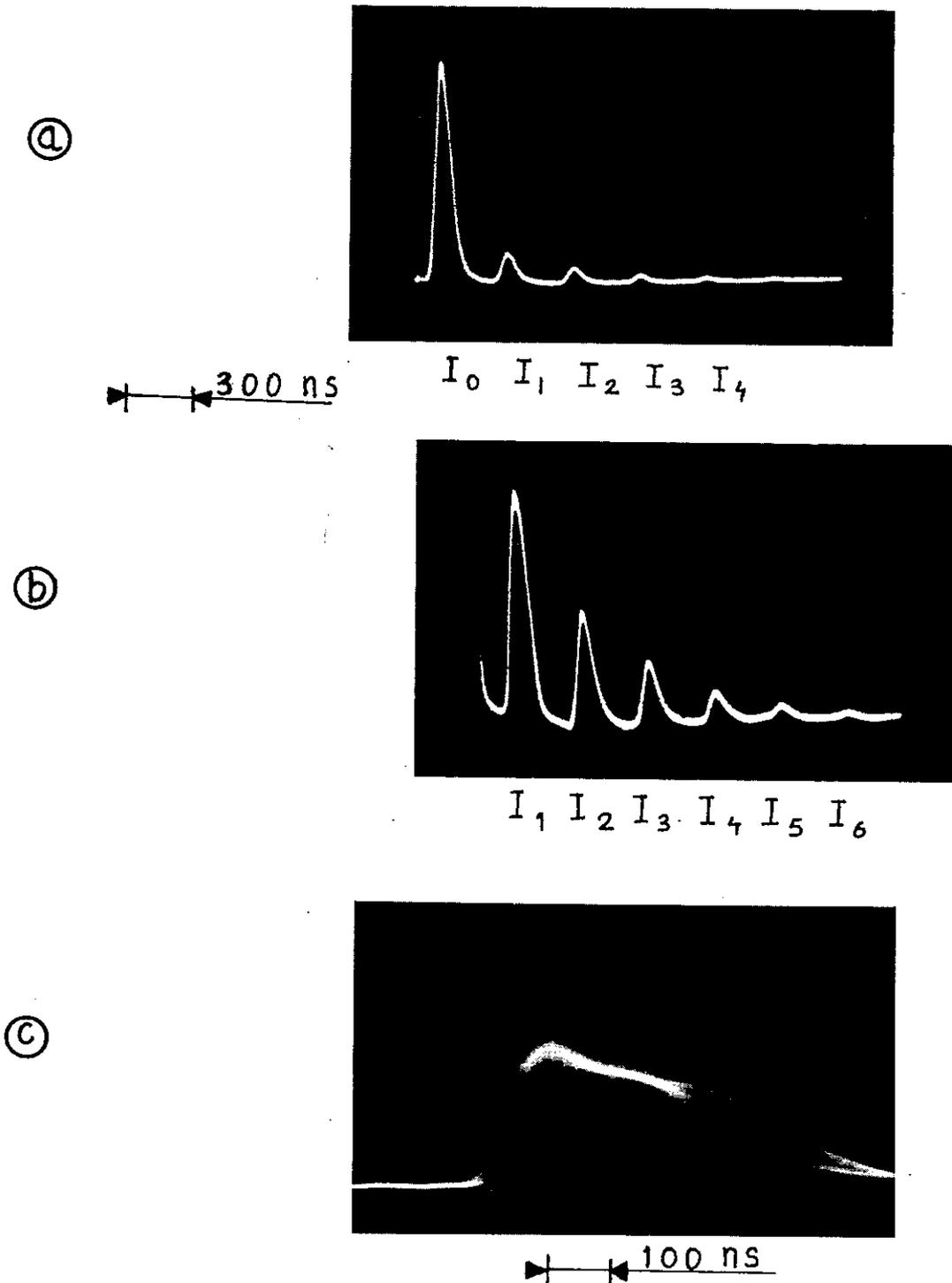
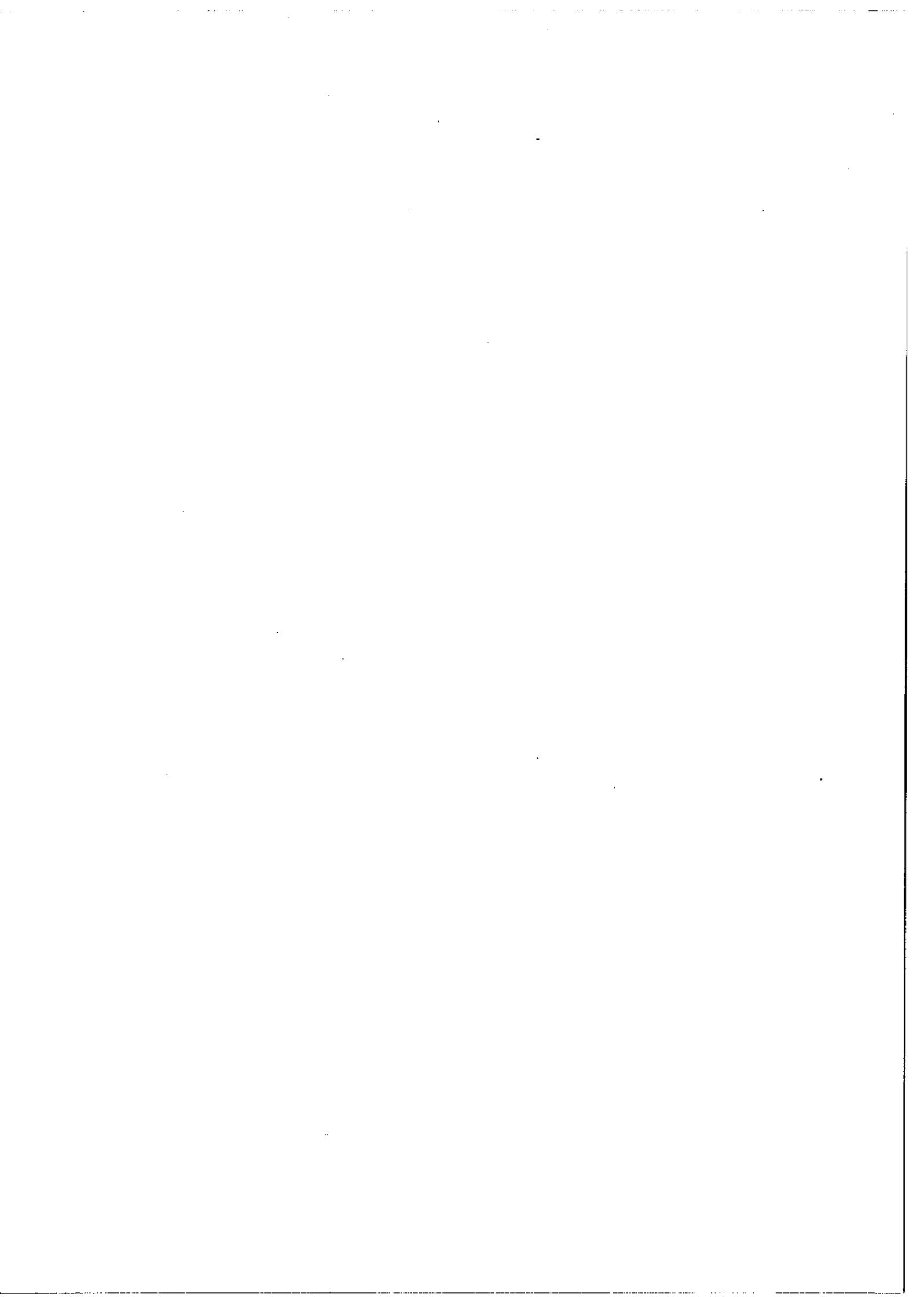


Figure 36

Echos obtenus avec la ligne à retard pour $\Delta t \# 300$ nsec.
 Ⓐ : Pulse de saturation et échos. Ⓑ : Echos seuls échelle $\times 5$ (on distingue aisément les six premiers échos). Ⓒ : Réapparition des interférences pour une impulsion laser de durée supérieure à Δt .



encombrement instrumental raisonnable qui dépend surtout de la qualité des pouvoirs réflecteurs. Enfin pour chaque configuration donnée la mesure des intensités transmises des échos par l'absorbant donne l'évolution du coefficient d'absorption $\alpha_t(\Omega, \lambda)$ suivant un échantillonnage de pas Δt .

Le réglage de ce dispositif est en principe très simple puisqu'il s'agit d'un réglage géométrique sans précision interférométrique. Cependant nous avons vu en appendice que la distance D entre miroirs est assez critique (ou ce qui revient au même la connaissance précise du rayon de courbure). De plus si le réglage est effectivement assez simple pour une raie visible il n'en est plus de même dans l'infrarouge. Les difficultés sont de deux ordres. La direction du faisceau laser infrarouge en général ne coïncide pas exactement avec celle du faisceau de réglage (nous utilisons pour le réglage la raie laser $\lambda = 5.017 \text{ \AA}$ de l'argon ionisé ; à cette longueur d'onde les miroirs présentent un bon pouvoir réflecteur). La géométrie du faisceau à $1,5 \mu$ diffère aussi de celle du faisceau de réglage. Un calcul préalable permet de déterminer la focale et la position de la lentille de conjugaison pour adapter au mieux le faisceau laser à la cavité Fabry-Perot de la ligne à retard (nous avons déjà rencontré ce problème pour concentrer l'énergie laser dans la cuve à absorption - Chap. I . Il se pose également pour le Fabry-Perot servant pour l'étalonnage en fréquence). Une fois les étendues de faisceau soigneusement adaptées et un réglage préliminaire réalisé, le réglage définitif de la ligne à retard est effectué de la façon suivante. On détermine le faisceau infrarouge en trois points grâce à des diaphragmes et on assujettit ensuite le faisceau de

réglage à passer exactement pas ces diaphragmes. Les trois points choisis sont : la sortie du laser source, l'entrée dans la ligne à retard et le premier point d'impact sur le second miroir de la ligne à retard. On contrôle la qualité du réglage à l'aide d'un diaphragme placé en sortie de cuve et que l'on déplace perpendiculairement à la direction du faisceau. Le réglage est bon si tous les faisceaux (saturant et échos) donnent un signal maximum pour une même position du diaphragme.

Remarque : Notre dispositif donne des faisceaux sonde de même sens que le faisceau saturant (et de même fréquence). Nous ne pouvons analyser la saturation qu'à l'endroit même où elle est produite dans le profil de répartition des vitesses, c'est-à-dire au sommet de la perturbation. Une utilisation un peu différente de la ligne à retard, avec faisceaux de sortie distincts du faisceau saturant par exemple devrait permettre dans un stade ultérieur d'analyser aussi l'évolution du profil d'absorption saturée.

2. DETECTION ELECTRONIQUE.

Comme dans l'expérience précédente il s'agit d'une détection à portes mais cette fois les éléments constitutifs sont particulièrement adaptés à l'étude d'impulsions brèves. On désire en effet une résolution dans le temps supérieure à l'intervalle moyen entre deux échos.

Le principe du dispositif est le suivant (figure 37). Après détection et amplification, le signal (impulsions de saturation et d'analyse) parvient en parallèle sur un ensemble de portes. Chacune

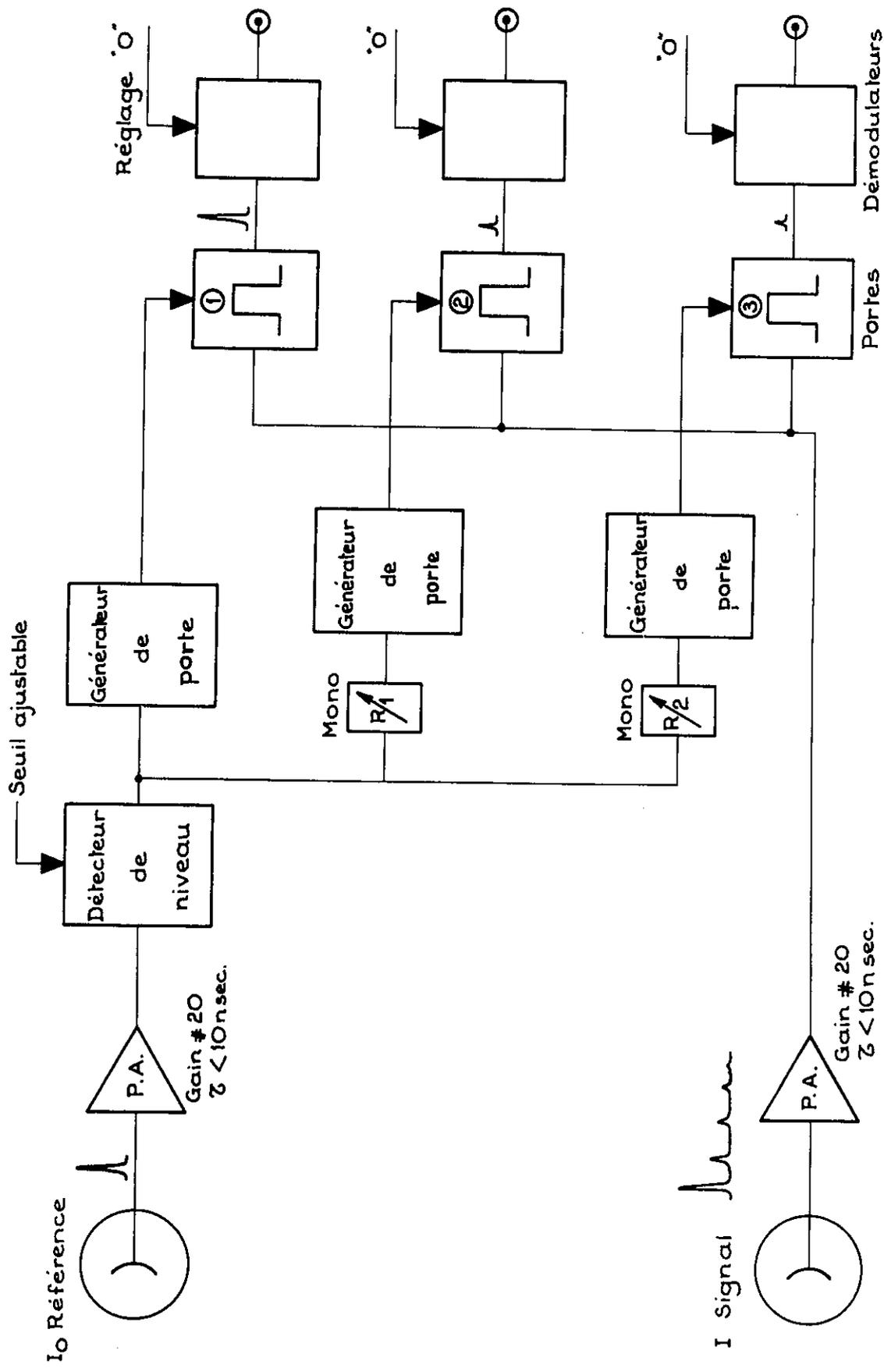
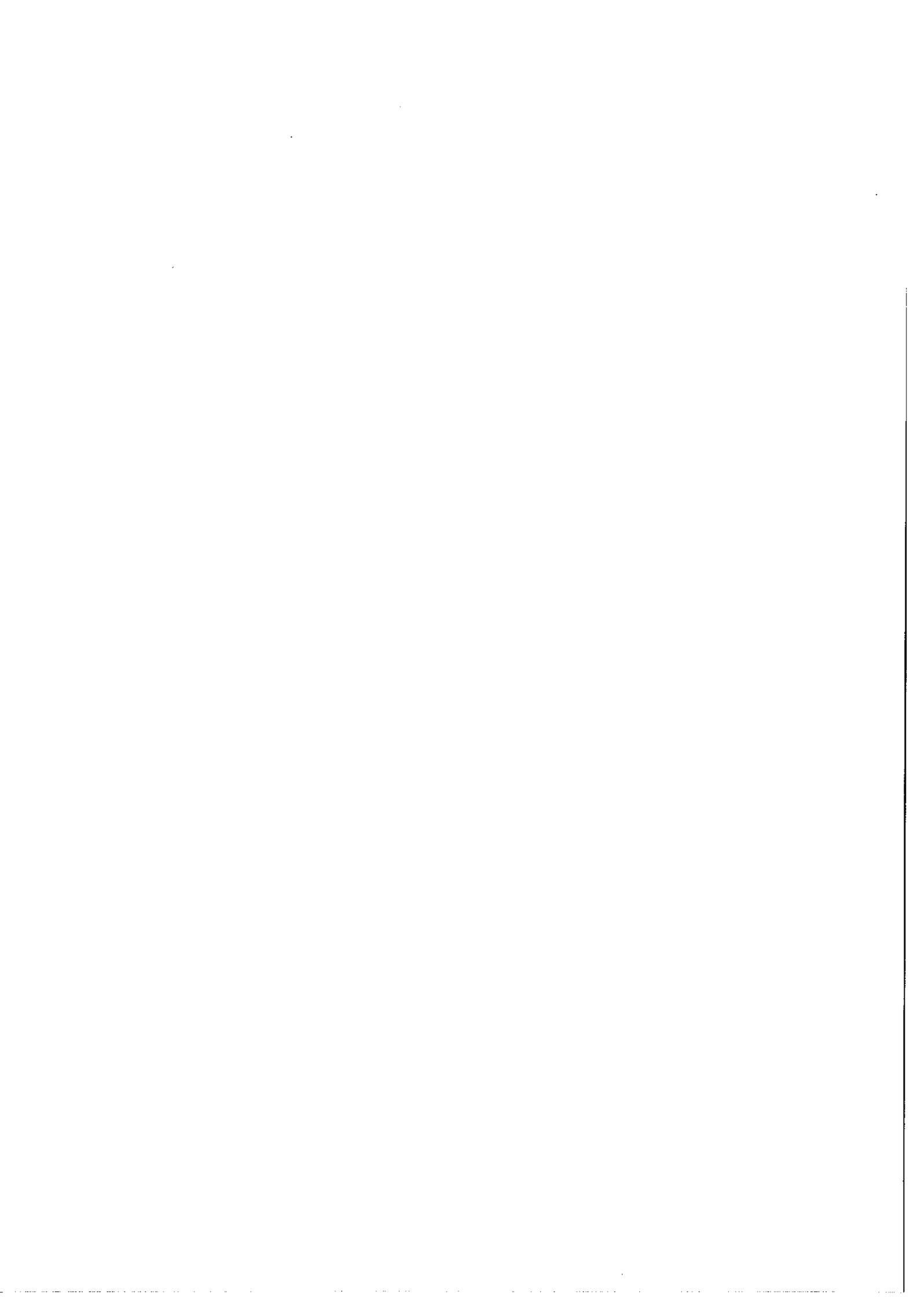


Figure 37

Bloc diagramme du dispositif électronique.



d'elles est "centrée" sur les signaux dont on peut mesurer les variations d'amplitudes grâce à des retards ajustables. Etant donnée la faible durée des impulsions électriques il est illusoire de chercher à déclencher les portes et le thyatron de puissance à partir d'une base de temps unique comme dans l'expérience précédente ; les petites instabilités aléatoires du déclenchement de l'impulsion laser ne sont plus négligeables devant la durée de l'impulsion. Il est donc essentiel de commander les portes à partir de l'impulsion laser elle même. C'est pourquoi notre montage comporte un faisceau de référence, obtenu en prélevant à la sortie du laser une faible fraction de l'énergie (fig. 34). A partir de ce signal un détecteur de niveau fournit une impulsion brève qui sert d'origine des temps pour l'ensemble du système de détection. La commande du laser reste, elle, indépendante, le système précédent se déclenchant automatiquement à chaque impulsion lumineuse.

Plus précisément la chaîne de détection présente successivement les éléments suivants (fig. 38) :

- Deux détecteurs infrarouges rapides : il s'agit de détecteurs photovoltaïques du type In-Sb , refroidis à 77°K . Leur détectivité est assez bonne à 1,5 μm (détectivité spécifique à 1,5 μm de l'ordre de $10^{10} \text{ cm} \cdot \frac{\text{H}^{\frac{1}{2}}}{\text{z}} \cdot \text{W}^{-1}$). Leur impédance est assez faible (quelques $\text{K}\Omega$). Leur temps de réponse sur 50 Ω est un peu inférieur à 10nsec.

- Deux préamplificateurs rapides : les caractéristiques des cellules infrarouges In-Sb permettent l'emploi de préamplificateurs très simples à deux transistors. Pour un gain fixe, de l'ordre de 20, leur

temps de montée est inférieur à 10 nsec. . Leur dynamique est de l'ordre du volt (en sortie).

- Un discriminateur de niveau : une diode tunnel et une diode backward en constituent les principaux éléments. Grâce à la partie négative de la caractéristique de la diode tunnel, le circuit L, R, C dans lequel elle est placée est oscillant pour une certaine gamme de polarisation de la diode. Pour un choix judicieux des éléments du circuit (réglage interne) il est possible de se placer à l'amortissement critique : pour une certaine valeur de la polarisation le système donne une impulsion unique très brève de quelques nanosecondes. En pratique un réglage externe de seuil permet d'ajuster la polarisation de telle sorte qu'il suffit d'une petite tension supplémentaire pour que la diode commute. Cette tension est celle de l'impulsion électrique correspondant au signal laser (fig. 39). Après mise en forme, l'impulsion de commutation commande l'ouverture de la première porte. Dans ce processus le facteur temps est essentiel : le déclenchement de la diode ainsi que l'ouverture de la porte demandent un certain temps et sans précaution particulière la première porte s'ouvre trop tard pour être centrée convenablement sur l'impulsion de saturation. C'est pourquoi le discriminateur comporte une diode backward dont le rôle est d'accélérer la transmission du signal de commutation dans le circuit. Le retard total pour le discriminateur ne dépasse pas 10 nsec.

- Trois portes rapides : pour ces premières mesures nous nous sommes limité à l'étude des deux premiers échos présentant seuls, en général, un bon rapport signal/bruit. Nous utilisons des portes

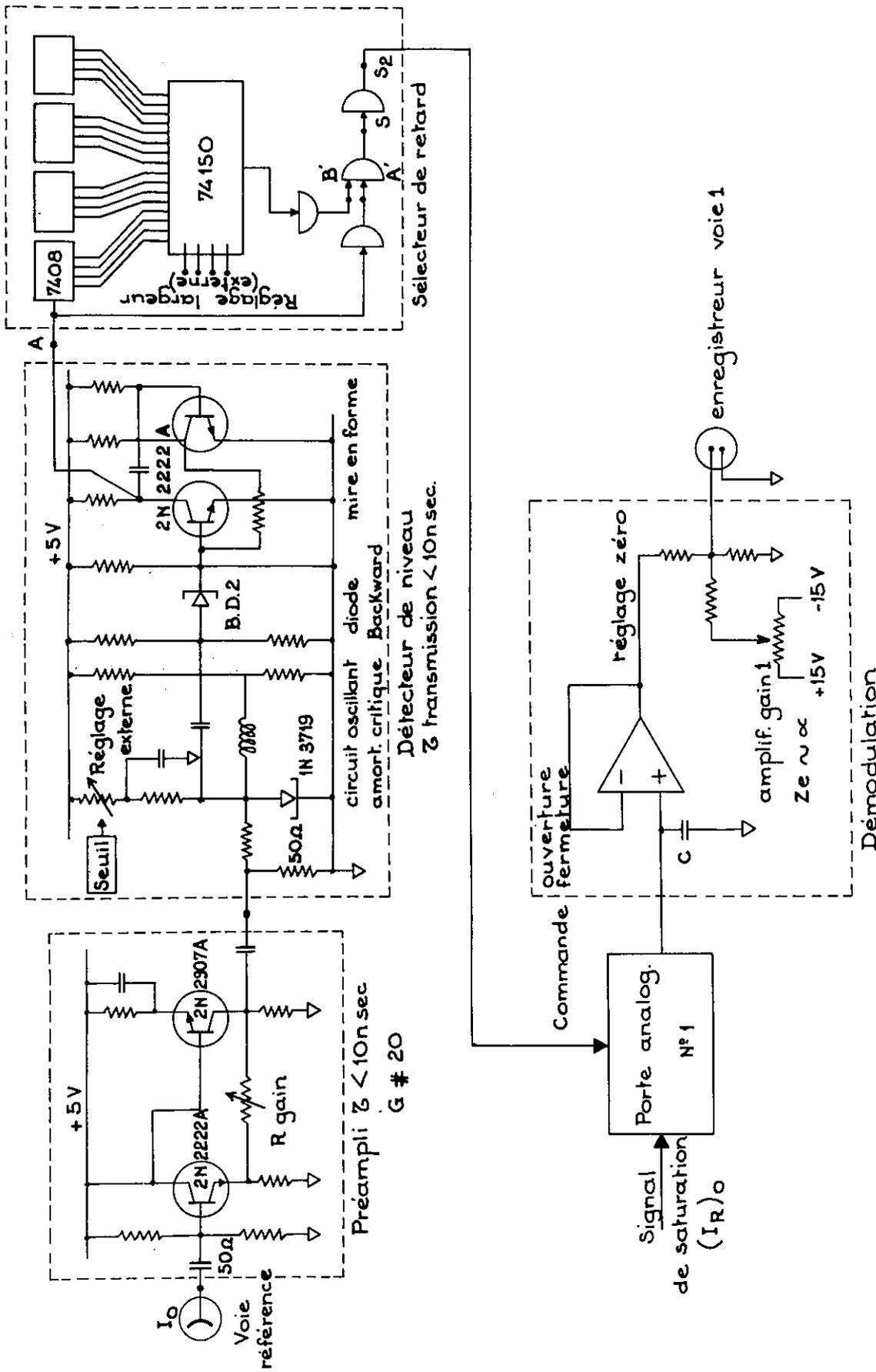
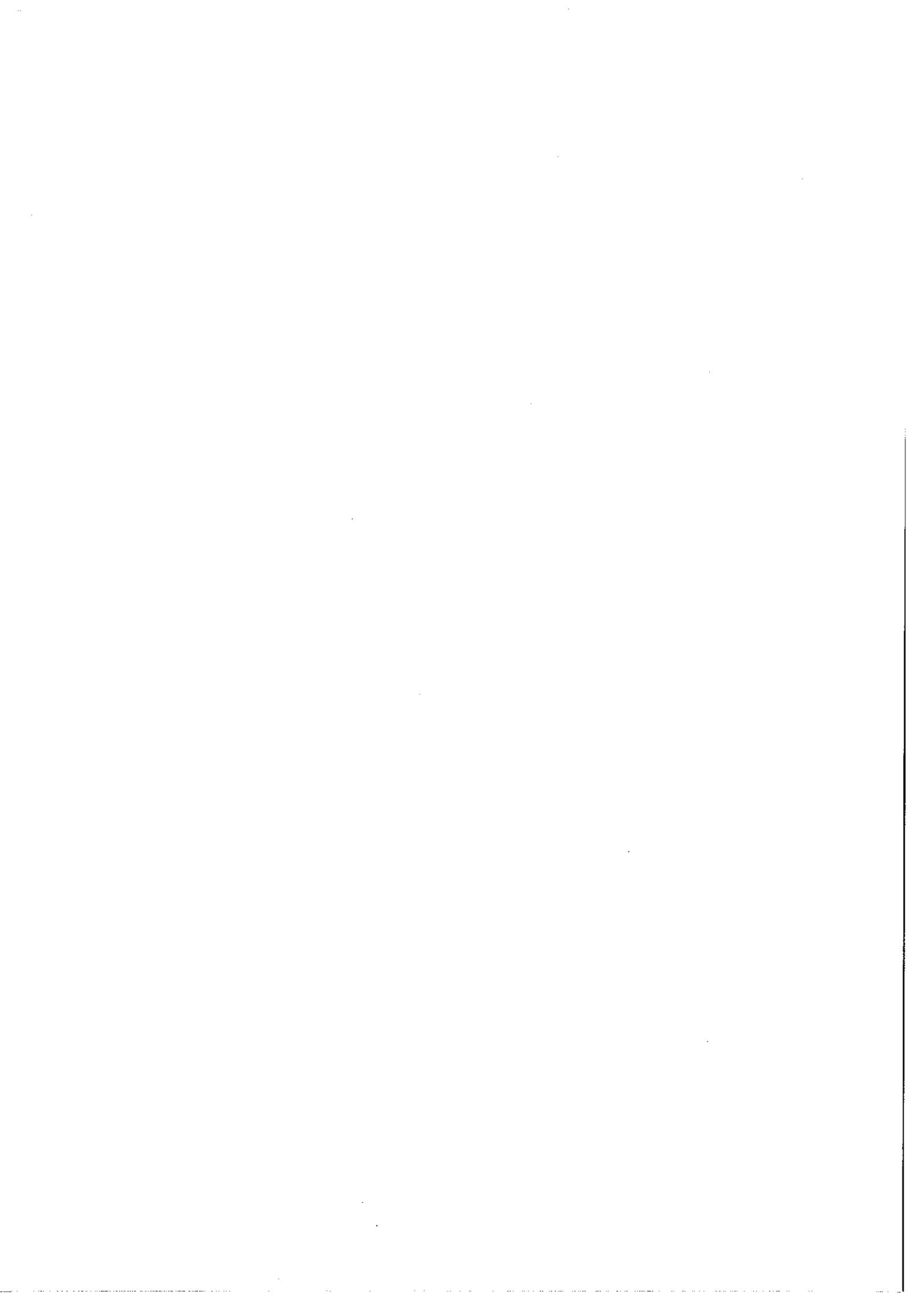


Figure 38

Détails du dispositif électronique : détecteur de niveau (voie référence) et voie "signal de saturation". Les deux autres voies (échocs) sont traitées de façon analogue (fig.37).



analogiques dont le temps de commutation à l'ouverture est de 20 nsec. environ. Deux retards ajustables R_1 et R_2 permettent de les centrer sur les échos 1 et 2 (R_2 est suffisamment variable pour permettre aussi de centrer la troisième porte sur l'écho n° 3 lorsque le rapport signal/bruit le permet). Notons que l'instant de commutation de la diode backward dépend de la raideur du front de montée de l'impulsion électrique après le préamplificateur ; il est donc particulier à chaque expérience ce qui nécessite un réglage de la position des portes à chaque manipulation. Il est de plus essentiel que l'intensité du laser ne varie pas en cours d'expérience (c'est pourquoi le faisceau de référence est prélevé avant l'absorption dans la cuve).

- Trois générateurs de portes : il s'agit de discriminateurs de retard à commutation binaire. Ce système permet par affichage externe, seize largeurs possibles pour chacune des portes depuis 10 nsec. jusqu'à 160 nsec. .

- Trois démodulations : elles sont analogues à celles utilisées dans la première expérience. Une faible capacité, placée à l'entrée d'un amplificateur d'impédance très élevée se charge à la tension crête du signal et garde cette valeur jusqu'à l'impulsion suivante (largeur de porte inférieure à celle du signal).

La figure 39 montre la séquence des principaux signaux. Le retard total de la chaîne ne dépasse pas 45 nsec. . La photo 40a montre les signaux parasites de déclenchement des portes qui à chaque commutation produisent des oscillations très rapides que l'on retrouve dans le circuit de mesure où elles se transmettent par effet capacitif.

Heureusement ces signaux sont bien constants au cours du temps et leur valeur moyenne à peu près nulle est facilement compensée par les réglages de zéros.

Parmi les problèmes posés par ce dispositif celui des détecteurs est particulièrement important. Nous avons effectué des essais préliminaires avec des cellules du type Ge-Au photorésistives, refroidies à 77°K. Ces détecteurs, d'assez bonne détectivité à 1,5 μm , ont une impédance élevée (200 K Ω environ). Ils donnent un temps de montée de 60 nsec. environ, à condition de les utiliser avec des préamplificateurs à compensation de capacité. Cette rapidité moyenne est compatible avec notre expérience, mais le signal présente un trainage important et en fait on ne peut résoudre complètement les échos (fig. 40b). Quelques essais effectués avec des cellules In-As non refroidies n'ont pas donné satisfaction tant du point de vue détectivité que du point de vue rapidité et en définitive nous avons préféré les cellules In-Sb bien qu'elles ne soient pas parfaitement bien adaptées à la mesure de signaux en impulsions. En effet leur réponse n'est linéaire que pour des signaux très faibles ce qui en pratique nous a contraint à analyser successivement l'impulsion saturante puis les échos (voir plus loin - mode opératoire). L'obligation de nous ramener à des signaux faibles (atténuation de l'impulsion saturante avant le détecteur) a été la source d'une seconde difficulté. Le déclenchement du thyatron de puissance produit des oscillations parasites auxquelles notre dispositif rapide est très sensible et qui suffisent à déclencher la diode tunnel. Pour les réduire à une valeur acceptable nous avons dû enfermer l'ensemble de la détection (y compris les détecteurs) dans

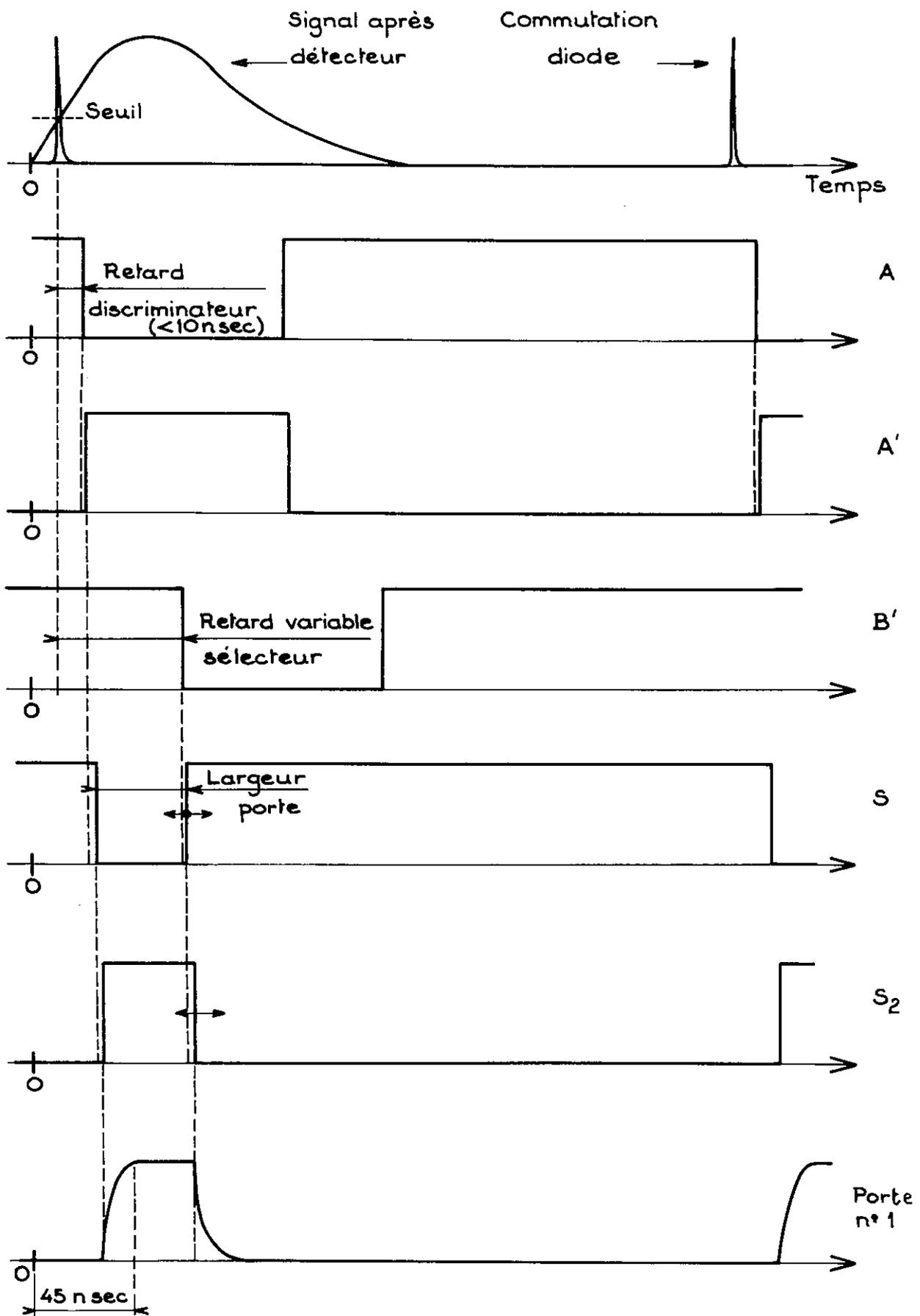
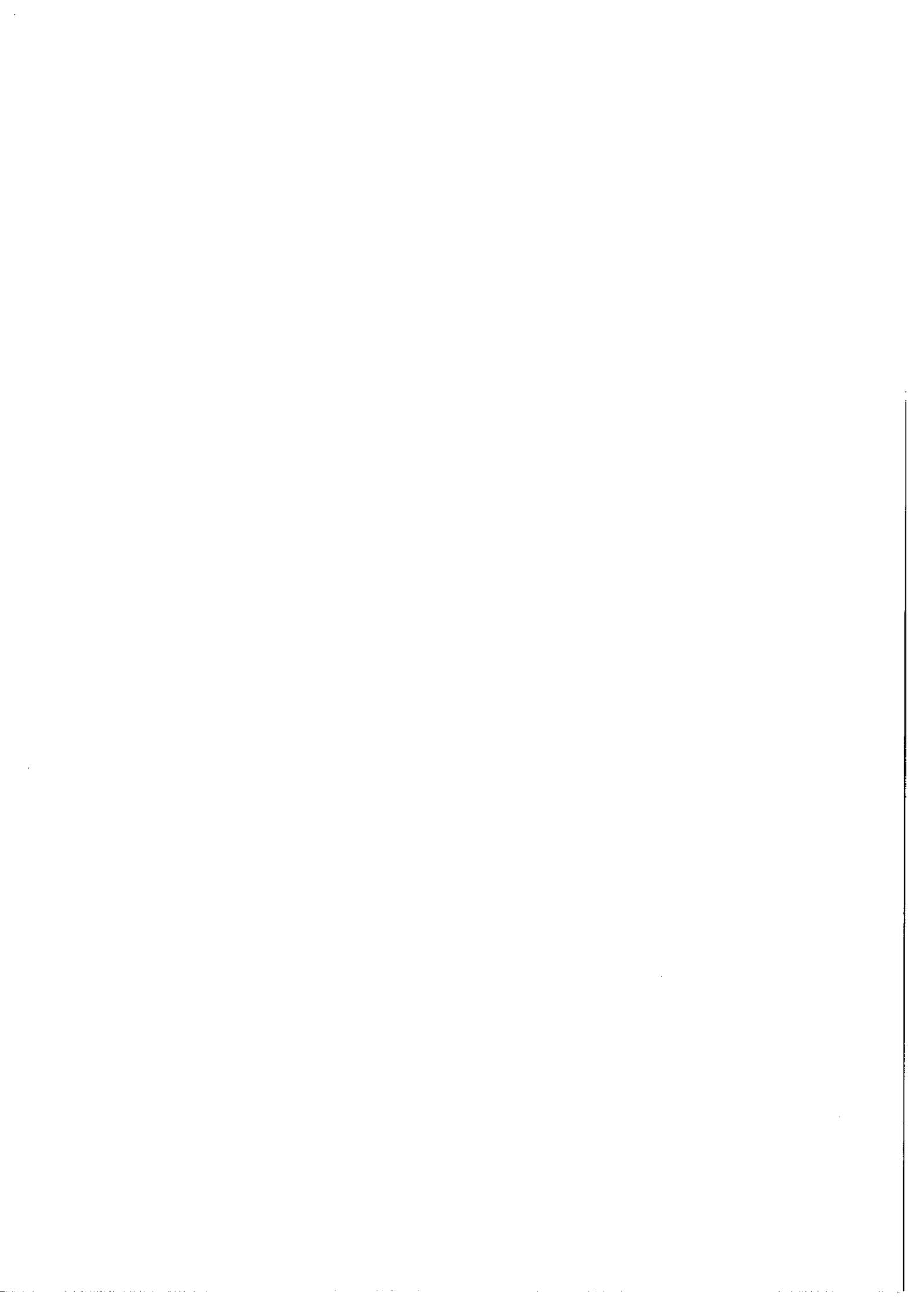


Figure 39

Séquence des signaux de commande.



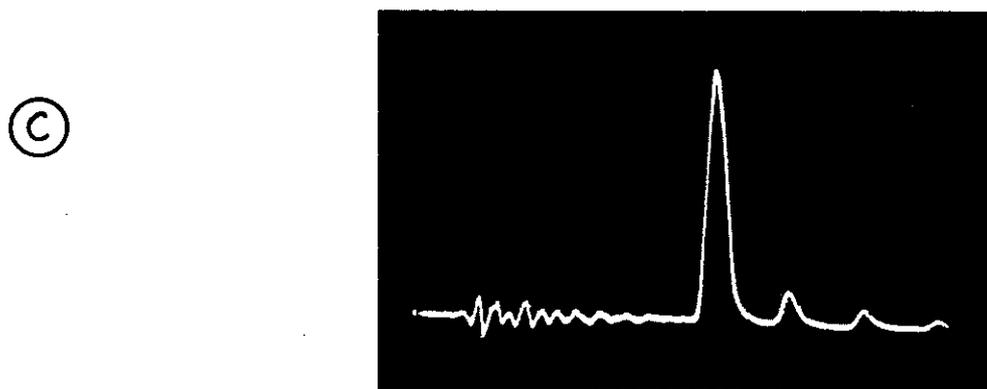
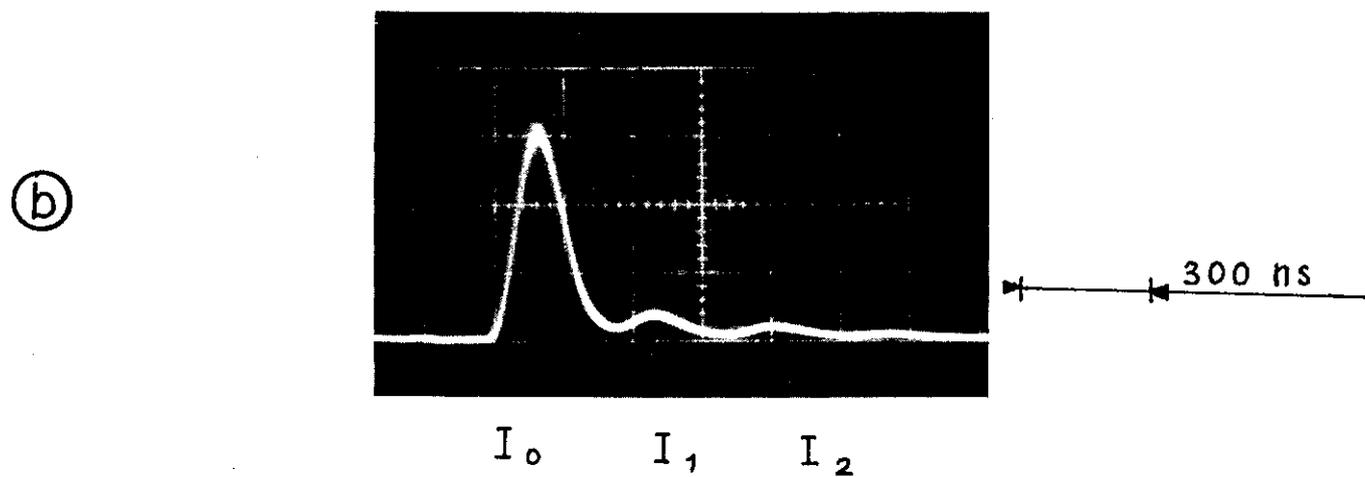
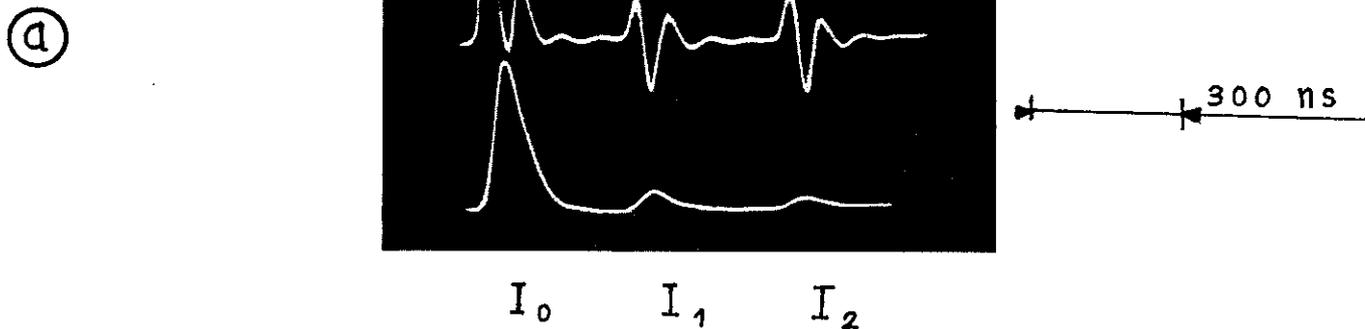
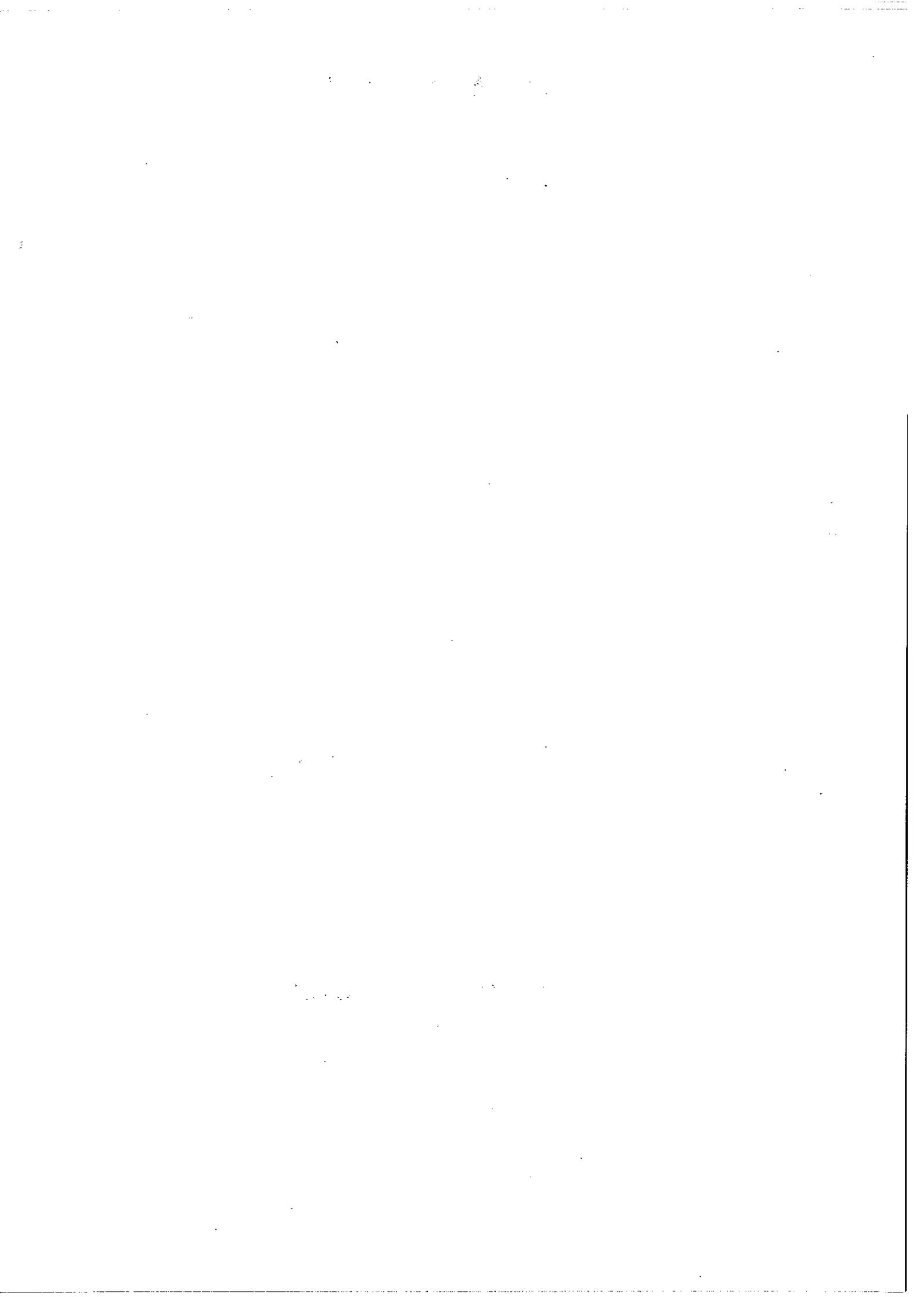


Figure 40

(a) : Signaux parasites lors de l'ouverture et de la fermeture des portes. (b) : Echos incomplètement résolus après le détecteur Ge-Au et son préamplificateur. (c) : Signaux parasites de déclenchement du thyatron de puissance.



une enceinte en cuivre (visible sur la fig. 35) soigneusement reliée à la masse. Les liaisons avec l'oscilloscope, l'enregistreur et le secteur ont dû être spécialement blindées. La photo 40c montre à quel niveau on a pu ramener ces oscillations qui sont d'amplitude comparable à celle de l'impulsion de saturation lorsque l'on ne prend pas ces précautions.

3. FONCTIONNEMENT DU LASER SOURCE.

Nous avons déjà évoqué dans la première partie quelques aspects particuliers du fonctionnement du laser source. L'emploi de détecteurs plus rapides nous permet ici de préciser certains points.

Nous avons constaté que pour des excitations électriques assez fortes, l'impulsion laser devient multiple. Selon la pression de baryum, la valeur du courant de crête des impulsions électriques et aussi selon l'état de vieillissement du tube l'effet laser peut se produire suivant une seule impulsion ou suivant plusieurs. Dans ce dernier cas les intensités relatives des différentes impulsions, leur forme, leur distance dans le temps et leur nombre dépendent beaucoup des facteurs ci-dessus. La figure 41a montre un aspect typique de ce fonctionnement. Sur cette figure il s'agit des impulsions en sortie de la ligne à retard ; les échos mal résolus sont à l'origine du traînage que l'on peut voir notamment dans les pieds des impulsions extrêmes (les détails de l'impulsion centrale apparaissent sur la figure 36c). Nous avons remarqué que dans certains cas ces impulsions multiples correspondent à des variations brusques dans la pente du courant de décharge mais ceci n'est pas systématique et actuellement nous n'avons pas d'explication satisfaisante

pour expliquer l'origine de ce phénomène.

Les figures 41b montrent l'évolution du profil de l'impulsion laser pour une excitation plus faible. On remarque que lorsque le courant croît on passe progressivement d'une impulsion unique assez faible et très brève (20 nsec.) à une impulsion d'intensité plus élevée de durée plus importante et qui présente plusieurs extrêmmum. Une excitation plus élevée permet de gagner encore en puissance laser mais conduit rapidement à l'apparition des impulsions multiples évoquées ci-dessus.

En pratique nous nous sommes donc placés dans le cas correspondant à l'intensité maximum pour une impulsion unique (fig. 41b $I_c \sim 130A$). Dans ce cas la durée de l'effet laser compte tenu de l'élargissement dû au détecteur est de l'ordre de 70 nsec. ce qui correspond à l'ordre de grandeur estimé dans la première partie (paragraphe C).

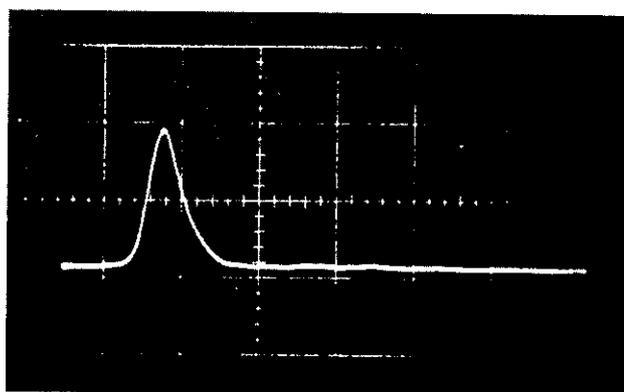
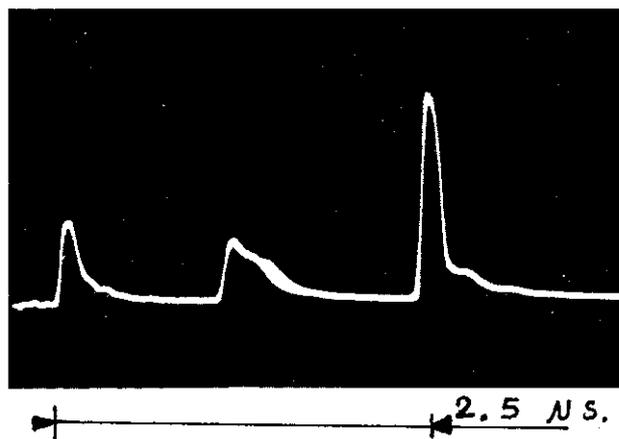
B) ANALYSE THEORIQUE.

1. RAPPEL DE QUELQUES RESULTATS DE LA THEORIE GENETIQUE DES GAZ.

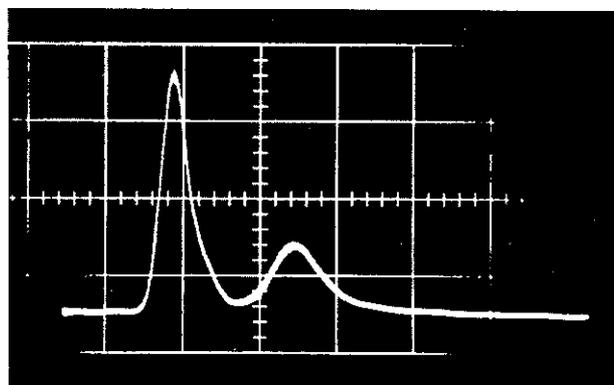
En théorie génétique on assimile les atomes (ou molécules) à des sphères dures. Pour un mélange gazeux contenant deux espèces différentes A et B d'atomes de diamètres Φ_A et Φ_B , le rayon de la sphère de protection correspondant au contact des sphères des deux espèces d'atomes est

$$r_c = \frac{1}{2} (\Phi_A + \Phi_B) \quad (1)$$

Ⓐ

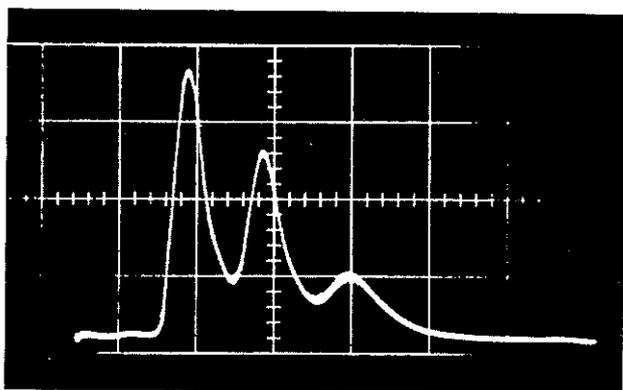


$I_c = 80 \text{ A.}$

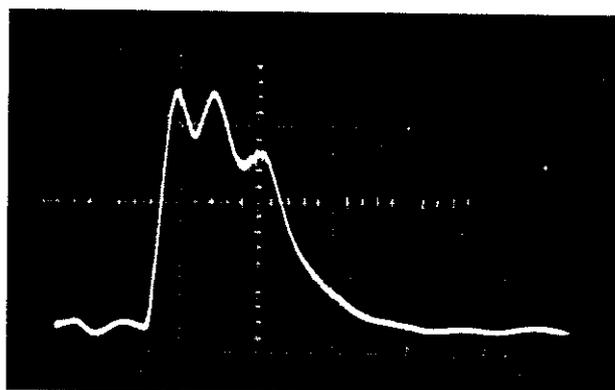


$I_c = 95 \text{ A.}$

50 ns.



$I_c = 115 \text{ A.}$



$I_c = 130 \text{ A.}$

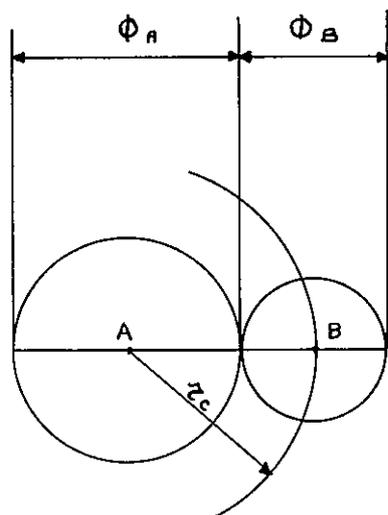
Ⓑ

Figure 41

Ⓐ : Fonctionnement du laser monomode sur plusieurs impulsions successives. Ⓑ : Evolution de l'impulsion laser (unique) en fonction de l'intensité de crête I_c du courant d'excitation.

et la section de choc est définie par

$$S_c = \pi r_c^2 \quad (2)$$



La durée moyenne entre deux chocs d'un atome de l'espèce A avec des atomes de l'espèce B est :

$$(\tau_c)_A = \frac{1}{S_c \bar{v}_R n_B} \quad (3)$$

où n_B est la densité d'atomes B et \bar{v}_R la vitesse relative moyenne entre les atomes A et B :

$$\bar{v}_R = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi} \left(\frac{1}{m_A} + \frac{1}{m_B} \right)} \quad (4)$$

(m_A , m_B masse des atomes A et B et k_B constante de Boltzman).

Le libre parcours moyen pour l'atome A est :

$$\lambda_A = \bar{v}_A (\tau_c)_A \quad (5)$$

où \bar{v}_A est la vitesse moyenne des atomes A

$$\bar{v}_A = \sqrt{\frac{8k_B T}{\pi m_A}} \quad (6)$$

Dans le cas particulier où le gaz ne comporte qu'une seule espèce d'atomes de masse m , de diamètre Φ et de densité n les formules (3) et (5) deviennent :

$$\tau_c = \frac{1}{\pi \sqrt{2} \Phi^2 n \bar{v}} \quad \text{et} \quad \lambda = \frac{1}{\pi \sqrt{2} \Phi^2 n}$$

Nous nous proposons ici de calculer τ_c pour des chocs entre atomes de baryum ou pour des chocs d'atomes de baryum avec les atomes du gaz

porteur. Comme ce dernier est en général à une pression bien supérieure à celle du baryum, les collisions de loin les plus nombreuses ont lieu entre atomes d'espèces différentes (baryum et gaz porteur). Les atomes sont supposés dans leur état fondamental.

La densité d'atomes de baryum à la température T est donnée par

$$n_{(\text{Ba})} = \frac{P}{k_B T} \quad \text{avec} \quad \log P = 10,825 - \frac{8760}{T} \quad (1)$$

en unités (c.g.s.) [70] .

La densité d'atomes du gaz porteur est :

$$n_{(\text{G.P.})} = \frac{N_0}{V_0} \times \frac{P}{P_0} \times \frac{T_0}{T} \quad (N_0 = 6 \cdot 10^{23} \text{ c.g.s.})$$

Enfin nous prenons pour les diamètres atomiques ceux donnés par Allen [71] (diamètres en \AA) :

$$\Phi (\text{He}) = 2,1$$

$$\Phi (\text{Ar}) = 3,12$$

$$\Phi (\text{Ne}) = 2,2$$

$$\Phi (\text{Kr}) = 3,54$$

$$\Phi (\text{Ba}) = 5,6$$

Ils correspondent approximativement au maximum de la densité radiale de la distribution de charge pour l'état fondamental.

Dans ces conditions pour une température absolue de 900°K , soit une pression de $0,9 \cdot 10^{-2}$ torr pour la vapeur de baryum, ou encore 10^{14} at./ cm^3 environ (pour les atomes à l'état fondamental) et pour une pression de 1 torr du gaz porteur, soit une densité de 10^{16} at./ cm^3 ,

(1) Cette équation suppose la vapeur de baryum pure et en équilibre, donc surestime probablement la pression.

on trouve les valeurs numériques résumées dans le tableau ci-dessous (les grandeurs calculées correspondent à des atomes de baryum en collision soit avec des atomes identiques soit avec les atomes du gaz porteur, ici : He, Ne, A et Kr).

	Ba	He	Ne	A	Kr
$S_c \times 10^{16} \text{ cm}^2$	98	46,6	47,8	59,5	65,7
$\bar{v}_R \times 10^4 \text{ cm/sec.}$	5,25	31	10,4	7,8	5,9
$(\tau_c)_{Ba} \text{ nsec.}$	19400	69	201	215	258
$(\lambda)_{Ba} \text{ mm.}$	7,2	0,026	0,075	0,079	0,096

2. EVOLUTION DU COEFFICIENT D'ABSORPTION APRES LE PASSAGE DE L'IMPULSION SATURANTE.

a) Calcul élémentaire.

Nous reprenons ici l'étude d'un système à deux niveaux mais cette fois en régime transitoire et nous cherchons l'évolution des populations $n_a(v)$ et $n_b(v)$ une fois cessée l'excitation optique. Comme au cours des calculs effectués dans la partie théorique on suppose faible l'épaisseur optique du milieu et aucune restriction n'est faite quant à l'intensité de crête de l'impulsion saturante. Nous supposons cependant que la durée de l'impulsion est suffisamment grande pour que le régime permanent soit atteint et nous négligeons les effets de cohérence. La première hypothèse sera discutée au paragraphe suivant. La seconde résulte des ordres de grandeurs (très différents)

des constantes de relaxation γ_a et γ_b des niveaux pour la transition du baryum à 1,5 μm et a déjà été discutée dans la partie théorique. De même nous négligeons les effets de l'émission spontanée ; comme nous l'avons vu ces effets sont négligeables pour cette transition.

Avec ces hypothèses l'évolution des populations est donnée, avec les notations du Chapitre II, par :

$$\begin{aligned} \frac{d n_a(t, \nu)}{dt} &= \lambda_a(\nu) - n_a(t, \nu) \gamma_a \\ \frac{d n_b(t, \nu)}{dt} &= \lambda_b(\nu) - n_b(t, \nu) \gamma_b \end{aligned} \quad (I)$$

La résolution de ce système est triviale ; avec nos hypothèses nous pouvons prendre comme conditions initiales les solutions des équations en régime permanent soit :

$$\begin{aligned} 0 &= \lambda_a(\nu) - \gamma_a n_a(\nu) - W_+(\nu)[n_a(\nu) - n_b(\nu)] \\ 0 &= \lambda_b(\nu) - \gamma_b n_b(\nu) + W_+(\nu)[n_a(\nu) - n_b(\nu)] \end{aligned} \quad (I)'$$

d'où

$$n_a(\nu) = \frac{\lambda_a(\nu)}{\gamma_a} - \Delta n_{ab0}(\nu) \chi_a \frac{\gamma_{ab}^2}{\gamma_{ab}^2(1+\chi) + (\Omega + k\nu)^2} \quad (1)$$

$$n_b(\nu) = \frac{\lambda_b(\nu)}{\gamma_b} + \Delta n_{ab0}(\nu) \chi_b \frac{\gamma_{ab}^2}{\gamma_{ab}^2(1+\chi) + (\Omega + k\nu)^2} \quad (2)$$

avec
$$\chi_\alpha = \frac{g^2 E^2}{2\hbar^2 \gamma_\alpha \gamma_{ab}} \quad \alpha = a, b \quad \text{soit} \quad \chi = \chi_a + \chi_b$$

et
$$\Delta n_{ab0}(\nu) = \frac{\lambda_a(\nu)}{\gamma_a} - \frac{\lambda_b(\nu)}{\gamma_b}$$
 différence des populations non perturbées.

Le système (I) donne alors pour la différence des populations :

$$\Delta n_{ab}(t, \nu) = \Delta n_{ab0}(\nu) \left[1 - (\chi_a e^{-\gamma_a t} + \chi_b e^{-\gamma_b t}) \frac{\gamma_{ab}^2}{\gamma_{ab}(1+\chi) + (\Omega + k\nu)^2} \right] \quad (3)$$

Si maintenant on tient compte de la durée de vie très faible du niveau supérieur a résonant, devant celle du niveau inférieur b métastable, à faible pression on a $\gamma_a \gg \gamma_b$. Si cette inégalité est conservée malgré les effets des collisions il vient :

$$\Delta n_{ab}(t, \nu) = \Delta n_{ab0}(\nu) \left[1 - \frac{\chi_b \gamma_{ab}}{\gamma_{ab}^2 (1+\chi_b) + (\Omega + k\nu)^2} e^{-\gamma_b t} \right]$$

avec $\chi \neq \chi_b$

ce qui exprime, comme on pouvait le prévoir, que la perturbation évolue avec la constante de temps du niveau métastable.

On déduit alors l'expression du coefficient d'absorption pour un faisceau sonde de même sens que le faisceau saturant, d'intensité faible et qui se produit à l'instant t_0 (l'origine des temps correspond à l'arrêt de l'oscillation optique que nous supposons brusque, c'est-à-dire de durée bien inférieure à $\frac{1}{\gamma_b}$) :

$$\frac{\alpha(\Omega, \chi_b, t_0)}{\alpha(0,0)} = \left[1 - \frac{\chi_b}{1+\chi_b + \sqrt{1+\chi_b}} e^{-\gamma_b t_0} \right] e^{-\left(\frac{\Omega}{\omega_d}\right)^2} \quad (3)'$$

en supposant $\omega_d \gg \gamma_{ab} \sqrt{1+\chi_b}$.

$\alpha(0,0)$ est le coefficient d'absorption en régime permanent pour un faisceau sonde en l'absence de champ saturant et au centre du profil d'absorption ($\Omega=0$).

Dans notre expérience nous mesurons $\alpha(\Omega, \chi_p, p \Delta t) \times l$ (l longueur active de la cuve) pour $p = 0, 1$ et 2 . De la mesure $p=0$ comparée à la mesure de $\alpha_0 l$ on déduit χ_p (voir Chapitre III) et la mesure pour $p=1$ (ou $p=2$) donne γ_p . Notons que la mesure de $\alpha(0,0)$ correspond au point $t_0 \rightarrow \infty$. On a au total quatre points expérimentaux pour un Δt donné (cinq points si on peut utiliser trois échos).

b) Effet des collisions élastiques.

Dans le calcul simplifié ci-dessus nous n'avons pas tenu compte explicitement des effets des collisions élastiques. Etant donné le caractère sélectif de la perturbation du profil de répartition des vitesses des atomes, les collisions modifiant la vitesse d'un atome sans modifier son état interviennent et le calcul qui suit montre leur influence dans l'évolution des populations pour une classe de vitesse donnée.

Soit $P_a(v', v)$ la probabilité par unité de temps pour qu'un atome du niveau a par exemple et de classe de vitesse v' (longitudinale) prenne la vitesse v sous l'action d'une collision élastique. Le taux d'excitation pour la classe de vitesse v est alors

$$\lambda'_a(v) = \lambda_a(v) + \int_{-\infty}^{+\infty} P_a(v', v) n_a(v') dv'$$

et le taux de désexcitation

$$\gamma'_a(v) = \gamma_a n_a(v) + \int_{-\infty}^{+\infty} P_a(v, v') n_a(v') dv'$$

L'expression de P_a dépend du modèle choisi pour ce type de collisions. Plaçons nous dans le cas du modèle simplifié dit des collisions fortes.

On admet alors que :

$$P_a(v', v) = \Gamma_a f(v)$$

c'est-à-dire que quelle que soit la distribution des vitesses avant la collision, est Maxwellienne après la collision : Γ_a est l'inverse du temps moyen entre deux collisions de ce type pour le niveau a . On admet que Γ_a est indépendant de v .

Les équations d'évolution des populations s'écrivent donc maintenant :

$$\frac{d}{dt} n_a(t, v) = \lambda_a(v) - (\gamma_a + \Gamma_a) n_a(t, v) + \Gamma_a f(v) \int_{-\infty}^{+\infty} n_a(t, v') dv' \quad (\text{II})$$

$$\frac{d}{dt} n_b(t, v) = \lambda_b(v) - (\gamma_b + \Gamma_b) n_b(t, v) + \Gamma_b f(v) \int_{-\infty}^{+\infty} n_b(t, v') dv'$$

Comme dans le calcul précédent on suppose que les conditions initiales correspondent au régime permanent en présence du champ saturant, soit :

$$0 = \lambda_a(v) - (\gamma_a + \Gamma_a) n_a(v) + \Gamma_a f(v) \int_{-\infty}^{+\infty} n_a(v') dv' - W_+(v) [n_a(v) - n_b(v)] \quad (\text{II})'$$

$$0 = \lambda_b(v) - (\gamma_b + \Gamma_b) n_b(v) + \Gamma_b f(v) \int_{-\infty}^{+\infty} n_b(v') dv' + W_+(v) [n_a(v) - n_b(v)]$$

Notons qu'en régime permanent et en l'absence de champ saturant,

$n_\alpha(v) = \frac{\lambda_\alpha(v)}{\gamma_\alpha}$ $\alpha = a, b$ sont solutions de (II)' : ce type de collisions ne modifie pas les populations des niveaux lorsqu'elles ne sont pas perturbées par le champ saturant.

Les systèmes (II) et (II)' ne peuvent se résoudre sans approximation. Nous pouvons calculer une solution approchée en remplaçant

dans l'intégrale $n_{\alpha}(v')$ par sa valeur en l'absence de collision élastique. Cette approximation est satisfaisante si $\frac{\gamma_{ab} \sqrt{1+\chi}}{\omega_d} \ll 1$ hypothèse supposée réalisée dans tous les calculs précédents ; c'est le cas également pour la raie $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$ tant que χ ne dépasse pas quelques unités ($\gamma_{ab} \# 0,31 \text{ mK}$ pour la demi-largeur naturelle, $\omega_d \# 7,2 \text{ mK}$ à 900°K pour la demi-largeur Doppler à $\frac{1}{e}$ du maximum).

- Solution en régime permanent :

Dans le système (II)' on remplace sous le signe intégral les populations $n_{\alpha}(v)$ par leurs valeurs déterminées plus haut (solutions du système (I)'). En posant :

$$\Gamma'_{\alpha} = \gamma_{\alpha} + \Gamma_{\alpha}$$

$$\lambda'_{\alpha}(v) = \lambda_{\alpha}(v) \left(1 + \frac{\Gamma_{\alpha}}{\gamma_{\alpha}}\right) \mp \frac{\sqrt{\pi}}{\sqrt{1+\chi}} \frac{\gamma_{ab}}{\omega_d} \Delta n_{ab0}(v) e^{-\left(\frac{\Omega}{\omega_d}\right)^2} \Gamma_a \chi_a$$

(signe - pour $\alpha=a$, signe + pour $\alpha=b$), le système (II)' prend une forme identique à celle du système (I)' et la résolution donne :

$$\Delta n_{ab}(v) = \Delta n_{ab0}(v) \left[1 - \varepsilon(\Omega) \left(\chi_a \frac{\Gamma_a}{\Gamma'_a} + \chi_b \frac{\Gamma_b}{\Gamma'_b}\right)\right] \left[1 - \frac{\chi' \gamma_{ab}^2}{\gamma_{ab}^2 (1+\chi') + (\Omega + kv)^2}\right] \quad (4)$$

$$\text{avec } \varepsilon(\Omega) = \frac{\sqrt{\pi}}{\sqrt{1+\chi}} \times \frac{\gamma_{ab}}{\omega_d} \times e^{-\left(\frac{\Omega}{\omega_d}\right)^2}$$

$$\text{et } \chi' = \frac{\mathcal{G}^2 E^2}{2\pi^2 \gamma_{ab}} \left(\frac{1}{\Gamma'_a} + \frac{1}{\Gamma'_b}\right)$$

Le dernier facteur a une forme identique à celui obtenu lorsqu'on n'explique pas l'effet des collisions élastiques. Seul le terme correctif du second facteur particularise ce type de collisions ; il exprime

simplement qu'une fraction des atomes d'un niveau donné est diffusée dans le profil de répartition des vitesses sous l'effet de ces collisions, avant de disparaître du niveau.

La formule (4) montre que l'effet de ces collisions sur le profil de répartition des vitesses est double. D'une part la perturbation est atténuée ; son amplitude au sommet ($kv = -\Omega$) est déterminée par le rapport $\frac{\chi'}{1+\chi'}$ et on a $\chi' < \chi$. D'autre part, loin de la région perturbée, la différence de population n'est plus celle en l'absence de champ ; elle est atténuée par le facteur $1 - \epsilon(\Omega) \left(\chi_a \frac{\Gamma_a}{\Gamma'_a} + \chi_b \frac{\Gamma_b}{\Gamma'_b} \right)$. Ce facteur reste assez proche de l'unité. Ainsi pour $\Omega = 0$,

$$\epsilon(\Omega) \chi_a \frac{\Gamma_a}{\Gamma'_a} = \sqrt{\pi} \frac{\chi_a}{1+\chi} \times \frac{\sqrt{1+\chi} \gamma_{ab}}{\omega_d} \quad \text{quantité sensiblement inférieure à}$$

l'unité même si χ est élevé puisque par hypothèse le troisième facteur est très faible. Cependant l'effet n'est pas négligeable devant la perturbation due à la saturation. Les conséquences pour le coefficient d'absorption, pour une analyse classique avec un faisceau sonde de même fréquence mais de sens opposé, sont alors claires : au pic de saturation habituel, qui est ici atténué, se superpose un "fond" à profil de Gauss qui, au voisinage du centre du profil compense en partie la diminution de l'amplitude du pic de résonance. Le signal de saturation présente donc dans ce cas des ailes plus importantes correspondant au profil Doppler de la transition. Smith et Hänsch ont mis cet effet en évidence sur la raie laser $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ dans le cas d'une saturation très faible [17]. Dans ce cas la relation (4) donne pour le signal d'absorption saturée la forme approchée :

$$\frac{\alpha(0,0) - \alpha(\Omega, \chi)}{\alpha(0,0)} \neq \left[\frac{\chi'}{2} \frac{\gamma_{ab}^2}{\gamma_{ab}^2 + \Omega^2} + \sqrt{\pi} \frac{\gamma_{ab}}{\omega_d} e^{-\left(\frac{\Omega}{\omega_d}\right)^2} \left(\chi_a \frac{\Gamma_a}{\Gamma'_a} + \chi_b \frac{\Gamma_b}{\Gamma'_b} \right) \right] e^{-\left(\frac{\Omega}{\omega_d}\right)^2}$$

- Solution en régime transitoire :

Le système (II) se résoud de façon analogue en remplaçant dans les intégrales les populations $n_\alpha(t, v)$ par les solutions obtenues en régime transitoire sans collision élastique (solutions du système I). Nous admettons encore ici que les conditions initiales correspondent aux solutions en régime permanent tenant compte des collisions élastiques (solutions du système (II)') .

Pour la différence de population on trouve l'expression suivante

$$\Delta n_{ab}(t, v) = \Delta n_{ab0}(v) \left\{ 1 - \varepsilon(\Omega) (\chi_a e^{-\gamma_a t} + \chi_b e^{-\gamma_b t}) + \right. \\ \left. (\chi'_a e^{-\Gamma'_a t} + \chi'_b e^{-\Gamma'_b t}) \left[\varepsilon(\Omega) - (1 - \varepsilon(\Omega)) C_{ab} \right] \frac{\gamma_{ab}^2}{\gamma_{ab}^2 (1 + \chi') + (\Omega + kv)^2} \right\} \quad (5)$$

Dans cette expression on a posé pour simplifier les notations :

$$C_{ab} = \chi_a \frac{\Gamma_a}{\Gamma'_a} + \chi_b \frac{\Gamma_b}{\Gamma'_b} = \chi - \chi' \\ \chi'_\alpha = \frac{\mathcal{P}^2 E^2}{2\pi^2 \gamma_{ab} \Gamma'_\alpha}$$

L'expression (5) montre qu'au cours du temps, la perturbation s'évanouit sous l'effet des collisions tout en s'élargissant. Cet élargissement est dû au fond gaussien de répartition des vitesses sous l'action des collisions élastiques. Ce phénomène apparaît plus clairement si on se place à saturation faible . Dans ce cas :

$$\Delta n_{ab}(v) \# \Delta n_{ab0}(v) \left\{ 1 - \left(\chi'_a e^{-\Gamma'_a t} + \chi'_b e^{-\Gamma'_b t} \right) \frac{\gamma_{ab}^2}{\gamma_{ab}^2 + (\Omega + kv)^2} \right. \\ \left. - \varepsilon(\Omega) \left[\chi'_a \left(1 - \frac{\gamma_a}{\Gamma'_a} e^{-\Gamma'_a t} \right) e^{-\gamma_a t} + \chi'_b \left(1 - \frac{\gamma_b}{\Gamma'_b} e^{-\Gamma'_b t} \right) e^{-\gamma_b t} \right] \right\} \quad (6)$$

Expression qui montre que la partie perturbée du profil, dont l'amplitude est atténuée par le facteur $1 - \varepsilon(\Omega)$, évolue comme les constantes Γ'_α , tandis que la partie gaussienne évolue en partie comme les constantes $\gamma'_\alpha < \Gamma'_\alpha$ c'est-à-dire disparaît plus lentement. Cet effet correspond à un élargissement apparent du profil du signal de saturation. Récemment Shahin et Hänsch ont mis expérimentalement en évidence cet élargissement sous l'effet des collisions élastiques pour la raie D_2 du sodium [72].

En ce qui nous concerne, nous nous intéressons seulement à l'amplitude au centre du pic de saturation (faisceau sonde de même sens que le faisceau saturant). Pour la raie du baryum on a $\frac{1}{\tau_a} \gg \frac{1}{\tau_b}$ et la largeur du métastable est sur tout due à l'action des collisions élastiques : $\Gamma'_b \# \Gamma_b \ll \gamma_a + \Gamma_a$. Alors $\chi_a \ll \chi_b$, $\chi'_a \ll \chi'_b$ et

$$\Delta n_{ab}(t, v) \# \Delta n_{ab0}(v) \left\{ 1 - \varepsilon(\Omega) \left(\chi_b e^{-\gamma_b t} - \chi'_b e^{-\Gamma'_b t} \right) \right. \\ \left. - (1 - \varepsilon(\Omega)) \chi_b \frac{\Gamma_b}{\Gamma'_b} \chi'_b e^{-\Gamma'_b t} \frac{\gamma_{ab}^2}{\gamma_{ab}^2 (1 + \chi'_b) + (\Omega + kv)^2} \right\}$$

ce qui donne pour le coefficient d'absorption, en négligeant les termes en $\varepsilon(\Omega)$ (ce qui est justifié tant que $\frac{\sqrt{1 + \chi'_b} \gamma_{ab}}{\omega_d} \ll 1$) :

$$\frac{\alpha(\Omega, \chi'_b, t)}{\alpha(0, 0)} = \left[1 - \frac{\chi'_b}{1 + \chi'_b + \sqrt{1 + \chi'_b}} e^{-\Gamma'_b t} \right] e^{-\left(\frac{\Omega}{\omega_d}\right)^2} \quad (6)'$$

expression analogue à (3)' en remplaçant λ_b par λ_b' et γ_b par

$$\Gamma_b' = \gamma_b + \Gamma_b .$$

En définitive, dans notre expérience, nous devons obtenir la valeur de la constante Γ_b' .

3. EFFETS SECONDAIRES.

a) Influence de la durée finie des impulsions.

- Cas de l'impulsion saturante.

Jusqu'à présent nous avons supposé la durée des impulsions suffisante pour que le régime permanent soit atteint. Ce n'est le cas, en réalité, que dans la mesure où la durée de l'impulsion est grande devant les constantes de relaxation des niveaux, comme le précise le calcul suivant.

Dans une hypothèse simplificatrice qui suffit pour décrire l'effet de façon approchée nous supposons que le milieu est soumis au temps $t=0$ à une impulsion à front de montée infiniment raide (échelon). Nous pouvons alors calculer l'évolution de la différence des populations $\Delta n_{ab}(t, \nu)$. Le système à résoudre est :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} n_a(t, \nu) &= \lambda_a(\nu) - \gamma_a n_a(\nu) - W_+(\nu)[n_a(\nu) - n_b(\nu)] \\ \frac{d}{dt} n_b(t, \nu) &= \lambda_b(\nu) - \gamma_b n_b(\nu) + W_+(\nu)[n_a(\nu) - n_b(\nu)] \end{aligned} \quad (\text{III})$$

(comme précédemment on néglige les effets de cohérence et d'émission spontanée ; on ne tient pas compte explicitement des collisions élastiques).

La résolution du système donne pour $k\nu = -\Omega = 0$ (sommet de la perturbation lorsque la fréquence du laser coïncide avec le centre du profil d'absorption) :

$$n_a(t,0) = \frac{\lambda_a(0)}{\gamma_a} - \frac{\chi_a}{1+\chi} \Delta n_{ab0}(0) + \chi_a \gamma_a (C_1 e^{\gamma_1 t} + C_2 e^{\gamma_2 t})$$

$$n_b(t,0) = \frac{\lambda_b(0)}{\gamma_b} + \frac{\chi_b}{1+\chi} \Delta n_{ab0}(0) + C_1 [\gamma_1 + \gamma_a (1+\chi_a)] e^{\gamma_1 t} \\ + C_2 [\gamma_2 + \gamma_a (1+\chi_a)] e^{\gamma_2 t}$$

C_1 et C_2 sont données par les conditions initiales

$$n_\alpha(0,0) = \frac{\lambda_\alpha(0)}{\gamma_\alpha} \quad \alpha = a, b$$

γ_1 et γ_2 sont les racines de l'équation

$$[\gamma + \gamma_a (1+\chi_a)][\gamma + \gamma_b (1+\chi_b)] = \gamma_a \gamma_b \chi_a \chi_b$$

Les résultats prennent une forme simple si on se place dans le cas

$$\gamma_a \gg \gamma_b \quad \text{soit} \quad \chi_a \ll \chi_b$$

ce qui correspond précisément au cas de la transition $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$.

On trouve :

$$\Delta n_{ab}(t,0) = \Delta n_{ab0}(0) \left[1 - \frac{\chi_b}{1+\chi_b} - \left(\frac{1}{1+\chi_b} - \frac{1}{1+2\chi_a} \right) e^{-\gamma_b \frac{1+\chi_b}{1+2\chi_a} t} \right. \\ \left. + \frac{2\chi_a}{1+2\chi_a} e^{-\gamma_a (1+2\chi_a) t} \right]$$

Envisageons les deux situations suivantes :

- $\chi_a \ll 1$ et χ_b satisfaisant seulement à $\chi_b \gg \chi_a$ (ceci correspond

à notre cas pour lequel $\chi \neq \chi_b$ ne dépasse pas quelques unités).

Alors :

$$\Delta n_{ab}(t,0) = \Delta n_{ab0}(0) \left\{ \frac{1}{1+\chi_b} + \frac{\chi_b}{1+\chi_b} e^{-\gamma_b(1+\chi_b)t} \right\}$$

- $\chi_a \ll 1$ et $\chi_b \ll 1$ (saturation faible) . Alors :

$$\Delta n_{ab}(t,0) = \Delta n_{ab0}(0) \left\{ 1 - \chi_b + \chi_b e^{-\gamma_b t} \right\}$$

la saturation évolue avec la constante de temps $\frac{1}{\gamma_b}$ c'est-à-dire celle du niveau métastable.

Application numérique :

Au bout du temps t après le début de l'excitation la fraction relative de la saturation définie par

$$\rho(t) = \frac{\Delta n_{ab}(t,0) - \Delta n_{ab0}(0)}{\Delta n_{ab}(\infty,0) - \Delta n_{ab0}(0)}$$

vaut

$$\rho(t) = 1 - e^{-\gamma_b(1+\chi_b)t}$$

Prenons $t = 70$ nsec. (durée de notre impulsion laser)

$$\frac{1}{\gamma_b} = 200 \text{ nsec. (calculs en théorie cinétique)}$$

pour $\chi_b \sim 1$ $\rho = 0,5$

et pour $\chi_b \ll 1$ $\rho = 0,3$.

Ces résultats montrent que lorsqu'on utilise une impulsion brève pour saturer le milieu absorbant, on est d'autant plus éloigné du régime permanent que l'intensité du champ saturant est faible.

Remarque : l'impulsion saturante ne cesse pas brusquement ; cependant

elle décroît sensiblement plus vite que n'évolue le niveau métastable. Dans la mesure où l'écho est bien séparé du signal de saturation tout se passe pour le coefficient d'absorption comme si l'impulsion saturante cessait brusquement.

- Cas des échos :

Supposons que les échos ne sont plus des pics de Dirac mais présentent un certain profil dans le temps de la forme $P(t)$ tel que

$$E_{-}^2(t) = K P(t) \quad \text{avec} \quad \int_0^{+\infty} P(t) dt = 1$$

$$\text{soit } K = \int_0^{+\infty} E_{-}^2(t) dt$$

Alors le coefficient d'absorption moyen sur la durée de l'impulsion supposée centrée en t_0 est donné, à partir de la formule (3)' par :

$$\begin{aligned} \frac{\langle \alpha(\Omega, \chi_b, t_0) \rangle_{\text{impulsion}}}{\alpha(0,0)} &= \left(1 - \frac{\chi_b}{1+\chi_b+\sqrt{1+\chi_b}} e^{-\gamma_b t} \right) * P(t) \\ &= 1 - \frac{\chi_b}{1+\chi_b+\sqrt{1+\chi_b}} e^{-\gamma_b t} * P(t) \end{aligned}$$

Dans le cas simple où l'impulsion sonde est un rectangle centré sur t_0 et de largeur δt

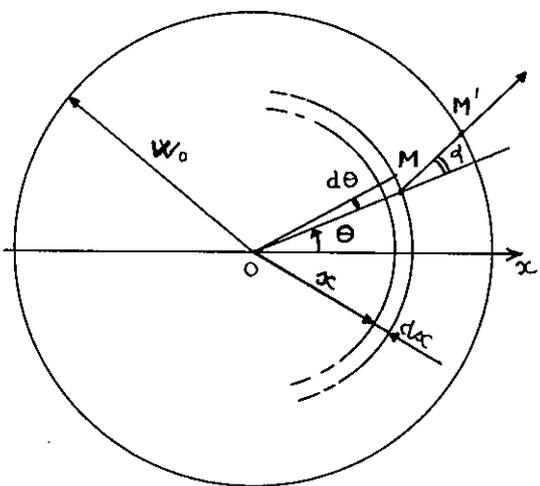
$$\frac{\langle \alpha(\Omega, \chi_b, t_0) \rangle}{\alpha(0,0)} = \left[1 - \frac{\chi_b}{1+\chi_b+\sqrt{1+\chi_b}} e^{-\gamma_b t_0} \frac{\text{sh} \frac{\gamma_b \delta t}{2}}{\frac{\gamma_b \delta t}{2}} \right] e^{-\left(\frac{\Omega}{\omega_d}\right)^2}$$

On peut remarquer que le premier terme correctif dû à la largeur finie de l'impulsion est du second ordre en $\frac{\gamma_b \delta t}{2}$. En prenant encore $\delta t = 70 \text{ nsec.}$ et $\frac{1}{\gamma_b} = 200 \text{ nsec.}$ la correction vaut environ $3 \cdot 10^{-2}$; elle reste faible bien que δt ne soit pas négligeable devant $\frac{1}{\gamma_b}$.

b) Influence de la migration des atomes :

Au cours du temps, par suite de leur mouvement, les atomes ayant subi l'absorption sortent de la zone de saturation et sont remplacés par des atomes non affectés par le faisceau saturant. Ainsi, l'effet de migration des atomes, tout comme les effets des collisions conduit à la disparition de la transparence du milieu induite par la saturation et on doit, en principe, en tenir compte dans l'expression de $\Delta n_{ab}(t, v)$. Le traitement exact, difficile, est compliqué ici par la distribution gaussienne de l'énergie laser dans le front de l'onde saturante. Un calcul très approché peut être le suivant.

Soit $2W_0$ le diamètre du faisceau saturant dans la cuve. Calculons le nombre d'atomes de vitesse longitudinale nulle qui sortent de la région saturée (cylindre de longueur l , longueur de la cuve, et de diamètre $2W_0$) sans avoir subi de collision.



Pour un tel atome situé dans l'élément de volume $dV = l x dx d\theta$ (figure ci-contre) la probabilité de sortie sans choc dans la direction \vec{MM}' est :

$$P_1 = e^{-\frac{MM'}{\lambda}}$$

(λ , libre parcours moyen).

Pour que cet atome sorte effectivement pendant l'intervalle de temps Δt entre deux échos successifs, il faut que sa vitesse

transversale soit supérieure ou égale à $\frac{MM'}{\Delta t}$; la probabilité pour qu'il en soit ainsi est :

$$P_2 = \int_{\frac{MM'}{\Delta t}}^{+\infty} P(v_z=0, v) dv = \int_{\frac{MM'}{\Delta t}}^{+\infty} 2\pi v \left(\frac{m}{2\pi k_B T}\right) e^{-\frac{m v^2}{2k_B T}} dv$$

soit $P_2 = e^{-\frac{m}{2k_B T} \left(\frac{MM'}{\Delta t}\right)^2}$ avec $MM' = \sqrt{x^2 \cos^2 \alpha + (\omega_0^2 - x^2)} - x \cos \alpha$

La fraction d'atomes de vitesse longitudinale nulle sortant de l'élément de volume dV sans collision est :

$$\rho(x) = \int_0^{2\pi} P_1 \times P_2 d\alpha$$

Pour l'ensemble de la région saturée la fraction d'atomes ainsi perdus est :

$$\rho = \int_0^{w_0} \rho(x) dx$$

Le calcul de ρ même dans ce cas simple est difficile.

De façon plus élémentaire on peut évaluer le temps mis par un atome pour parcourir w_0 . En supposant qu'il subisse un grand nombre N de chocs avant de sortie de la zone saturée on a :

$$\sqrt{N} \lambda = w_0$$

Le chemin parcouru avec la vitesse \bar{v} est $N\lambda$; donc le temps de transit est :

$$T = \frac{w_0^2}{\lambda \bar{v}}$$

Les calculs numériques effectués lors des rappels de théorie cinétique conduisent pour $w_0 = 0,4$ mm (cas de notre faisceau) à la valeur :

$T \# 5\mu\text{sec}$ dans le cas où le gaz porteur est du néon à la pression de 1 torr.

Ainsi T est bien supérieur aux valeurs des temps moyens entre chocs de baryum et d'atomes du gaz porteur calculés précédemment, à condition toutefois que la pression du gaz porteur ne soit pas trop faible.

note : dans ces calculs très approchés nous n'avons pas tenu compte du fait que pour des atomes de vitesse longitudinale nulle, λ et \bar{v} ne sont pas tout à fait ceux calculés au paragraphe B-1 .

c) Influence d'une saturation par les faisceaux sondes.

Afin d'effectuer nos mesures dans de bonnes conditions de rapport signal/bruit nous avons été amené dans cette étude à travailler avec une saturation relativement forte (χ_p de l'ordre de quelques unités) et avec des faisceaux sondes d'intensité non négligeable. A partir des points expérimentaux obtenus il est donc utile de corriger l'effet de saturation par les faisceaux sondes. Nous nous limitons ici à la saturation produite par le premier écho dont l'intensité est d'environ 14% de celle de l'impulsion saturante (l'intensité du deuxième écho n'est plus que de 7% environ).

L'effet d'une saturation par le premier faisceau sonde est double. L'absorption mesurée avec ce faisceau est inférieure à celle mesurée avec un écho d'intensité très faible. L'absorption mesurée avec le deuxième écho est, elle aussi, plus faible puisqu'alors on mesure la somme des effets dus au faisceau saturant et au premier faisceau sonde.

Appelons $\epsilon\chi$ le paramètre de saturation dû au premier écho, que nous supposons ici être un pic de Dirac au temps $t=t_0$. La différence de population juste avant son action est celle donnée par l'équation (3)'. Elle devient, juste après t_0 , au centre du profil ($\Omega=0$) :

$$\Delta n_{ab}(t_0, \nu) = \Delta n_{ab0}(\nu) \left[1 - \frac{(\chi_b e^{-\gamma_b t_0} + \epsilon\chi_b) \gamma_{ab}^2}{\gamma_{ab}^2 (1 + \chi_b + \epsilon\chi_b) + k^2 \nu^2} \right]$$

Ensuite cette différence de population évolue avec la même constante de temps et à l'instant $2t_0$ du deuxième écho elle n'est plus que :

$$\Delta n_{ab}(2t_0, \nu) = \Delta n_{ab0}(\nu) \left[1 - \frac{(\chi_b e^{-\gamma_b t_0} + \epsilon\chi_b) \gamma_{ab}^2 e^{-\gamma_b t_0}}{\gamma_{ab}^2 (1 + \chi_b + \epsilon\chi_b) + k^2 \nu^2} \right]$$

(dans les expressions ci-dessus on suppose, comme précédemment, que $\chi_a \ll \chi_b$). Nous en déduisons le coefficient d'absorption au centre du profil :

-à l'instant du premier écho :

$$\frac{\alpha(0, \chi_b, t_0)}{\alpha(0, 0)} = 1 - \frac{\chi_b e^{-\gamma_b t_0} + \epsilon\chi_b}{1 + \chi_b + \epsilon\chi_b + \sqrt{1 + \chi_b + \epsilon\chi_b}}$$

- à l'instant $2t_0$ du second écho :

$$\frac{\alpha(0, \chi_b, 2t_0)}{\alpha(0, 0)} = 1 - \frac{(\chi_b e^{-\gamma_b t_0} + \epsilon\chi_b) e^{-\gamma_b t_0}}{1 + \chi_b + \epsilon\chi_b + \sqrt{1 + \chi_b + \epsilon\chi_b}}$$

Notons que ϵ représente simplement le rapport de l'intensité du premier écho à l'impulsion saturante ; au numérateur le paramètre χ_b est un paramètre de saturation "effectif", le régime permanent n'étant pas atteint.

4. RESULTATS EXPERIMENTAUX.

a) Conditions expérimentales - mode opératoire.

Nous avons utilisé, lors de nos mesures, des faisceaux de 0,8 mm de diamètre au centre de la cuve d'absorption. L'intensité de l'impulsion saturante correspond à un paramètre de saturation de l'ordre de 3. La mesure précise des intensités des signaux successifs a donné pour le rapport entre l'intensité du premier écho et celle du faisceau saturant $\epsilon = 0,143$; le rapport des intensités de deux échos successifs est 0,48. La durée de chaque impulsion est d'environ 70 nsec. . Nous avons travaillé avec une absorption de l'ordre de 20%, en nous plaçant toujours au centre du profil d'absorption. La pression de vapeur de baryum est de l'ordre de $0,5 \cdot 10^{-2}$ torr à 10^{-2} torr, bien inférieure à celle du gaz porteur. Le mode opératoire a été le suivant.

- Une fois la fréquence du laser accordée au centre du profil, les franges données par le Fabry Perot multipassages nous permettent de nous assurer qu'il n'y a pas de dérive appréciable de la fréquence au cours de la mesure.

- Nous mesurons l'absorption relative sur le faisceau saturant pour deux intensités nettement différentes et de rapport connu, de ce faisceau. On opère à niveau constant sur la cellule selon la technique exposée au Chapitre III. L'atténuateur utilisé ramène l'intensité du signal, au niveau du détecteur, à une valeur voisine de celle du premier écho non atténué. De ces deux mesures nous déduisons le paramètre de saturation $\chi \# \chi_b$ puis le coefficient d'absorption en champ très

faible au centre du profil $\alpha(0,0)$ (en fait la mesure donne seulement l'épaisseur optique $\alpha(0,0)l$, l longueur de la cuve).

- Nous mesurons ensuite l'absorption relative sur chacun des deux échos. Cette opération est suivie de la mesure des "zéros" de lumière pour les échos, lorsque la cuve est allumée puis éteinte. Cette précaution est indispensable pour éliminer l'influence des signaux parasites provenant par exemple de l'émission spontanée de la cuve, d'un trainage éventuel du signal après le préamplificateur ou d'un "rebondissement" dans ce signal.

En définitive ce mode opératoire séquentiel donne pour les enregistrements effectués une succession de paliers. Pour chaque mesure nous obtenons quatre points expérimentaux correspondants aux instants $t=0$, t_0 , $2t_0$ et ∞ (t_0 correspond au retard Δt donné par la ligne à retard et le point à l'infini correspond à l'absorption en champ très faible déduite de la mesure de χ_b). La figure 42 présente l'aspect de résultats obtenus dans les meilleurs cas. Les points représentés sont ceux obtenus au premier stade des opérations. Ils correspondent à la mesure directe de l'absorption relative sans les corrections dues aux effets secondaires.

Pour le calcul de la constante de relaxation Γ'_b nous avons tenu compte essentiellement de la saturation due au premier écho ($\epsilon\chi_b \sim 0,4$). Nous n'avons pas tenu compte de la durée finie δt des impulsions sondes, ni des effets de la migration des atomes. Ces simplifications dans le dépouillement des résultats sont justifiées a posteriori par les valeurs numériques de Γ'_b ; elles conduisent à une valeur bien

inférieure à l'unité pour $\left(\frac{\delta t \Gamma'_b}{2}\right)^2$ et pour les pressions auxquelles nous avons travaillé $\frac{1}{\Gamma'_b}$ est bien inférieure au temps de transit T .

Le tableau ci-après résume les résultats obtenus :

Gaz porteur	Pression (G.P.) torr	τ_c (nsec) $(= \frac{1}{\Gamma'_b})$		τ_c moyen (nsec)	τ_c (nsec) théorie cin.	nombre de mesures
		écho 1	écho 2			
Néon	1,5	450	530	490	134	10
Krypton	1	340	460	400	258	4
	0,5	970	760	865	516	8

b) Analyse des résultats.

Compte tenu de la dispersion assez grande des résultats individuels pour chacune des mesures effectuées (25% à 30%) on peut considérer comme satisfaisant l'accord entre les moyennes sur les résultats des mesures effectuées avec le premier écho et avec le second.

De même on peut considérer comme satisfaisant le rapport des temps moyens entre collisions pour les deux pressions utilisées avec le krypton (rapport expérimental 0,46 pour un rapport théorique de 0,5).

Nos mesures conduisent à des temps moyens entre collisions sensiblement supérieurs à ceux prévus par la théorie cinétique notamment dans le cas du néon. Ceci peut s'expliquer de la façon suivante. Pour qu'une collision élastique soit efficace il faut que la modification de vitesse longitudinale qu'elle provoque pour l'atome soit assez grande

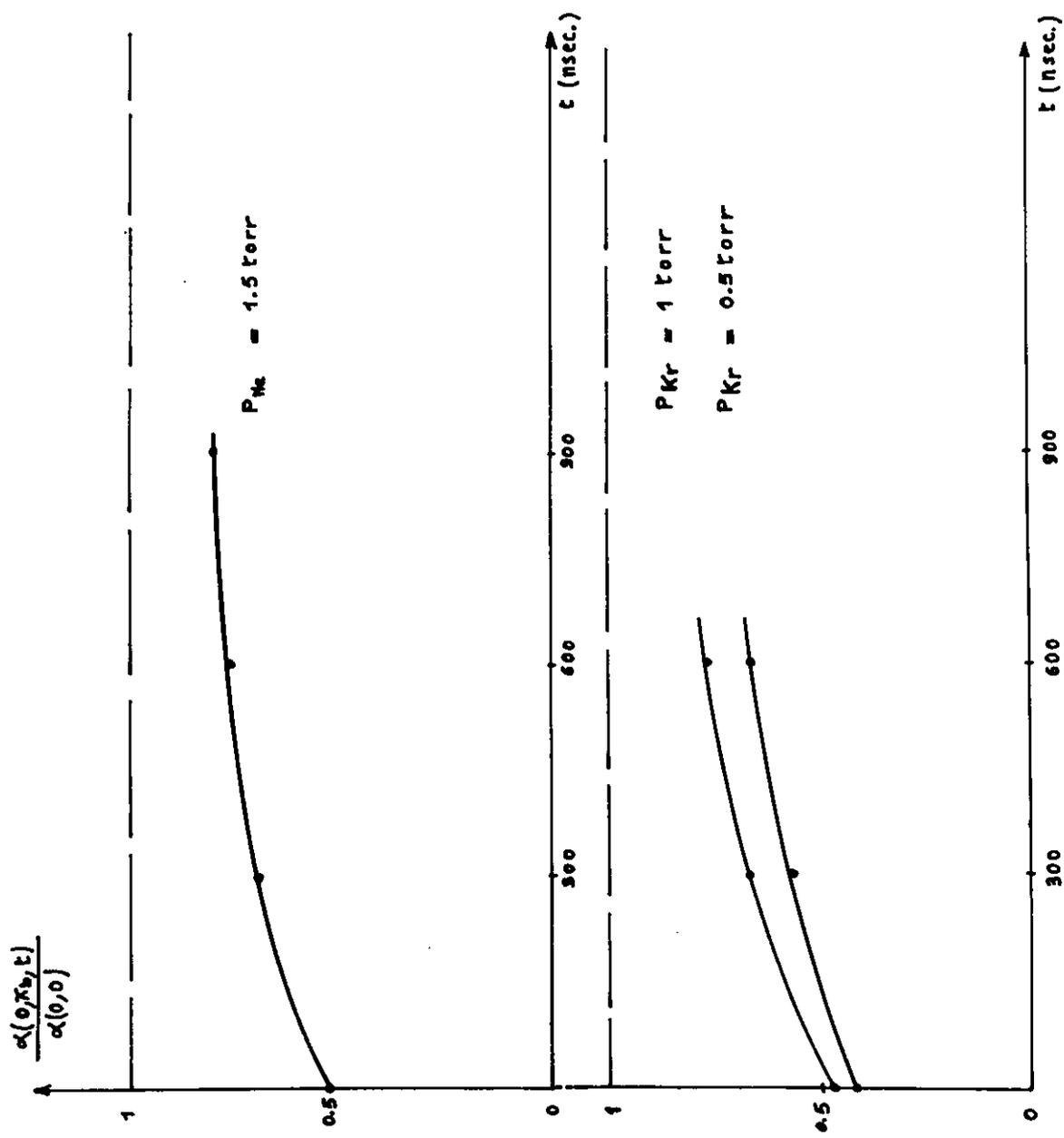
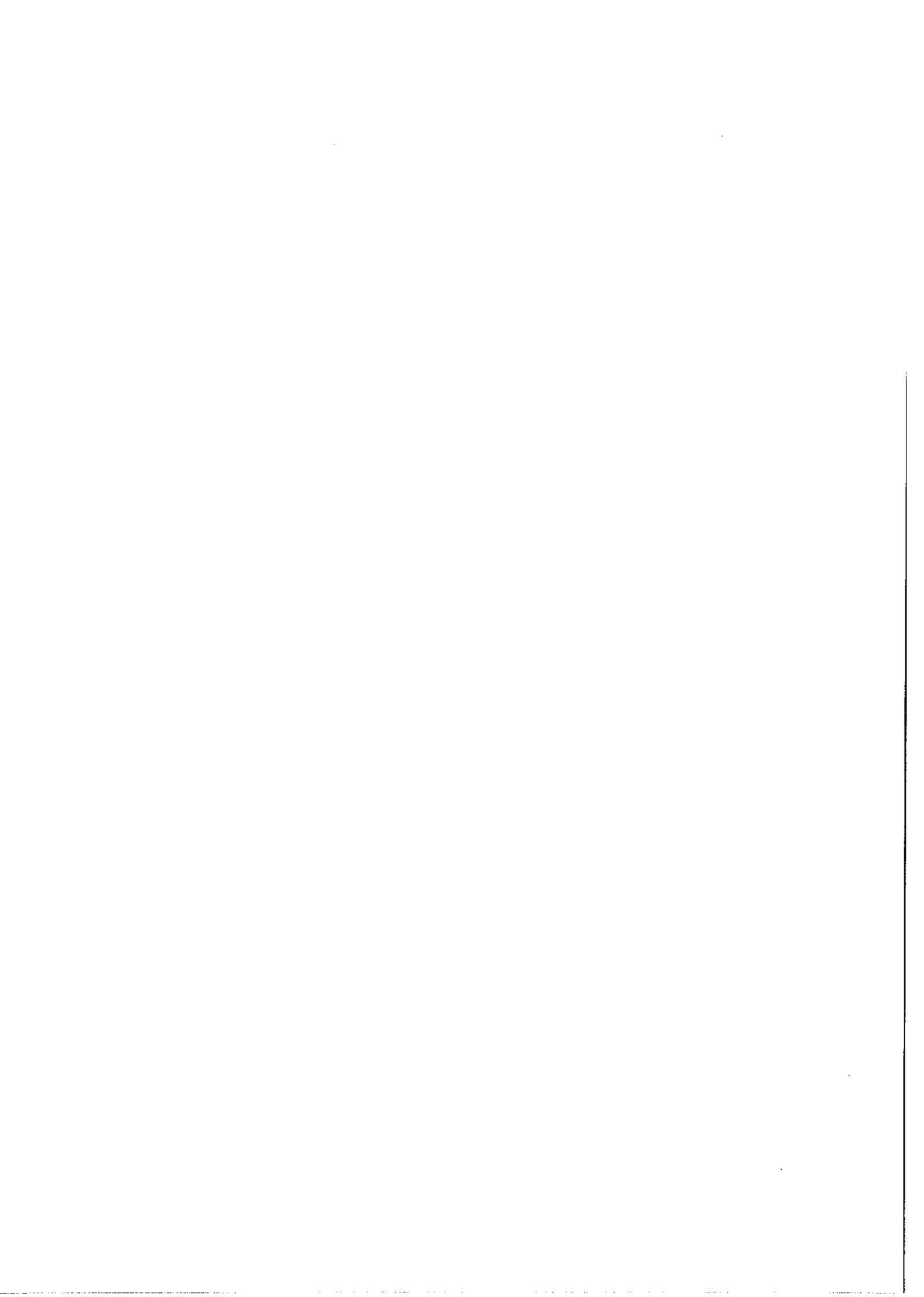


Figure 42

Evolution de la transparence du milieu absorbant.
Points expérimentaux.



pour que l'atome "sorte" de la région perturbée dans le profil de répartition des vitesses. La largeur de cette région est ici de l'ordre de 1,5 mK compte tenu de l'élargissement par saturation (12 mK pour la largeur Doppler). Dans ces conditions une fraction seulement de ces collisions est efficace ; cette fraction est d'autant plus faible que le gaz avec lequel les atomes de baryum sont en collision est plus léger. Ainsi peut-on s'attendre avec du néon à une efficacité moins grande qu'avec le krypton ce que montrent bien nos résultats.

La précision des résultats de ces premières mesures est limitée par plusieurs causes. D'une part nous avons travaillé avec un nombre d'échos très faible et les instabilités mécaniques de la ligne à retard (les deux miroirs ont des supports indépendants) produisent des fluctuations de leur intensité assez importantes. D'autre part, la mesure des pressions effectuée de façon classique à l'aide d'un manomètre thermique type "Pirani" n'a pas toute la précision souhaitable. Enfin la correction de saturation due au premier écho est seulement approchée. Nous comptons donc améliorer notre montage sur ces différents points et dans ce but nous avons récemment réalisé une monture pour ligne à retard présentée sur la figure 43. Comme le montre cette figure, elle est constituée de trois barres (en invar) rendant solidaires les deux supports de miroirs. L'un d'eux est du reste mobile longitudinalement ce qui permet de changer rapidement de configuration. La longueur maximum entre miroirs est de 2 mètres. Cette nouvelle ligne à retard, associée à des miroirs plus réflecteurs, doit permettre un échantillonnage serré de l'évolution du coefficient d'absorption avec une très

bonne stabilité des échos successifs. Une amélioration du rapport signal/bruit permettra de travailler avec des faisceaux sondes non saturants et aussi avec une saturation moins élevée pour la première impulsion. Ce dernier point signifie que nous pourrons utiliser des faisceaux assez larges pour rendre négligeables les effets de migration des atomes, même à pression faible ; l'influence de ces effets est difficile à calculer exactement. Enfin nous comptons aussi améliorer l'électronique en augmentant sa rapidité, ainsi que le nombre de voies de détection.

De ces améliorations nous attendons la possibilité de mesures systématiques de Γ'_b en fonction de la pression et de la nature du gaz porteur, et aussi en fonction de la pression de vapeur de baryum. D'autres études semblent également intéressantes, comme par exemple la mesure de Γ'_b en différents points du profil d'absorption ($\Omega \neq 0$) ou bien encore l'étude de la relaxation lorsque la cuve n'est plus excitée. De même il est possible d'utiliser des faisceaux sondes de sens opposé (avec une sortie distincte, pour les échos, du faisceau saturant) et d'enregistrer l'évolution dans le temps du profil du coefficient d'absorption. Notons que dans ce cas la comparaison du signal donné par le faisceau saturant et par un écho lointain (tel que la saturation ait pratiquement disparu) est aussi un moyen d'étudier un profil en absorption saturée à l'aide d'un seul faisceau ; la séparation des deux signaux ne se fait plus dans l'espace comme lors de notre première expérience, mais dans le temps.

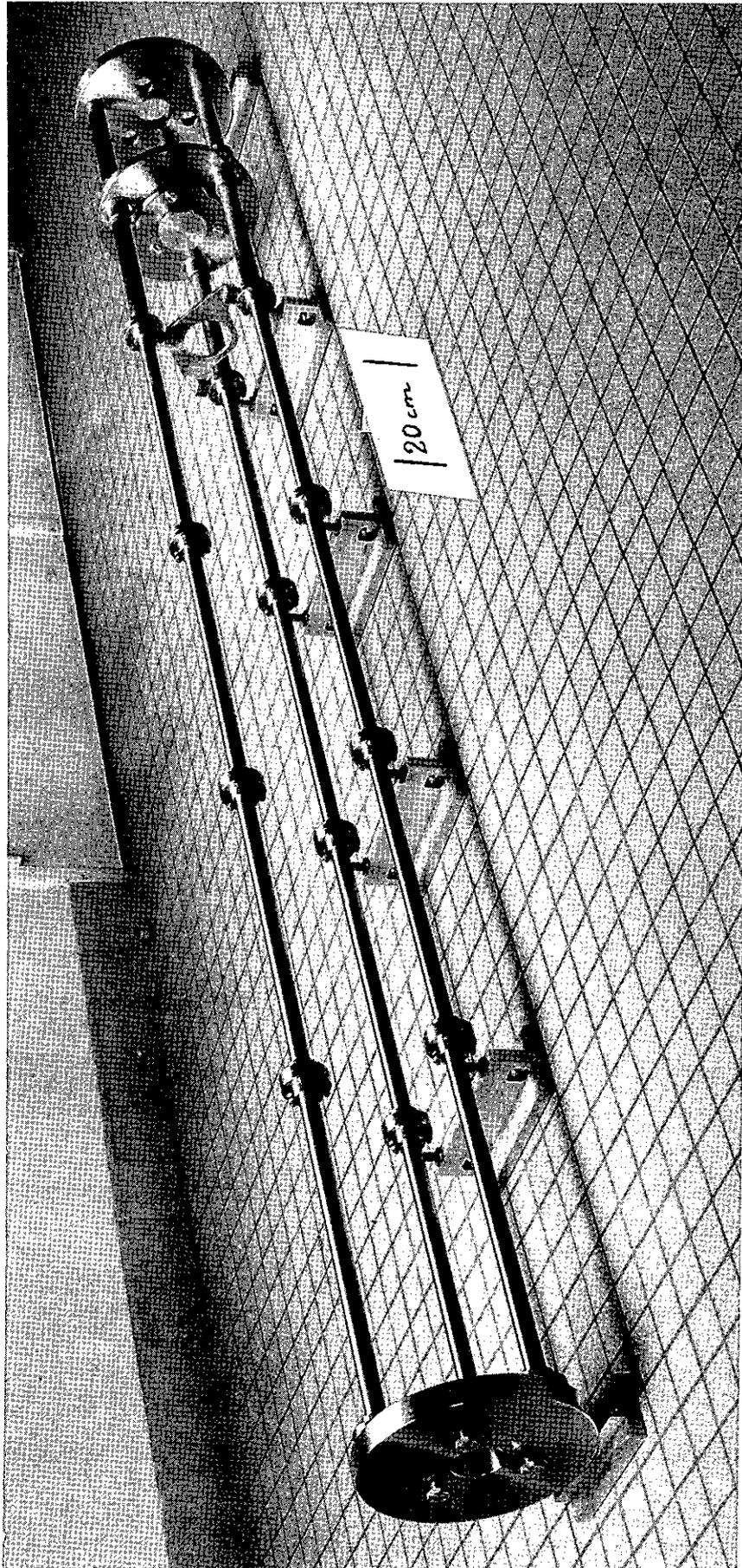
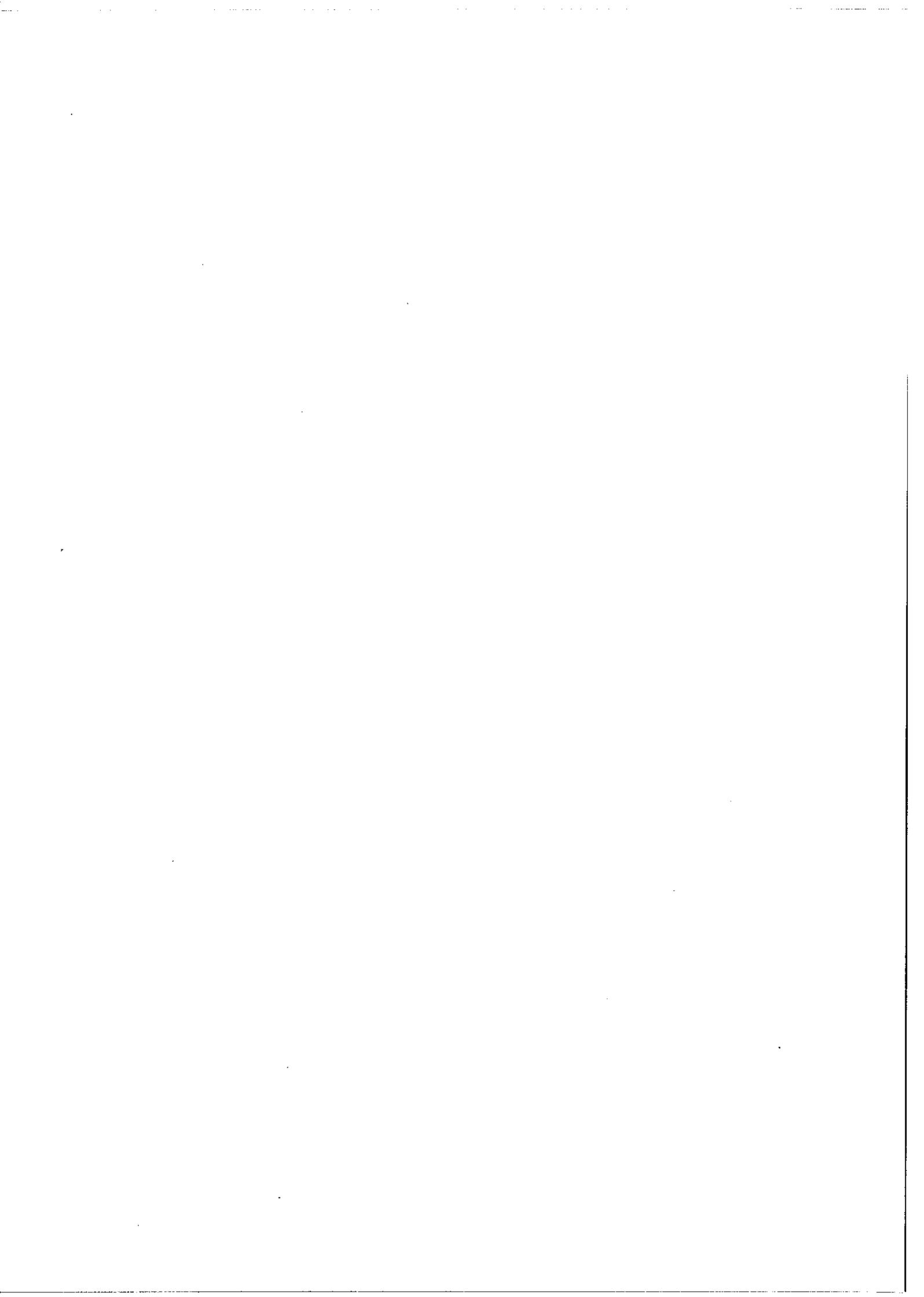


Figure 43



CONCLUSION

Au cours de ce mémoire nous avons présenté deux applications particulières des méthodes d'absorption saturée à la spectroscopie atomique. Dans la première est mis à profit le gain en résolution apporté par ces méthodes pour lesquelles la largeur des signaux obtenus est de l'ordre de grandeur de la largeur homogène des transitions et n'est plus limitée par l'effet Doppler. En spectroscopie atomique les faibles durées de vie des niveaux excités ne permettent pas des gains en résolution aussi élevés que ceux obtenus dans le domaine moléculaire, cependant nous avons obtenu sur la transition du baryum $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$ un gain de presque un ordre de grandeur par rapport à la largeur Doppler. Malgré de nombreuses difficultés, ceci nous a finalement permis de résoudre, en partie du moins, la structure hyperfine de la transition, habituellement masquée par l'effet Doppler. Dans la seconde application nous avons mis à profit le fonctionnement en impulsions de la source laser pour étudier en dynamique sur la même transition du baryum, les effets des collisions. Nos mesures préliminaires montrent qu'il est possible d'étudier ainsi la disparition de la transparence du milieu, induite par une impulsion saturante et d'en déduire le temps moyen entre deux collisions (essentiellement pour les collisions élastiques). En fait

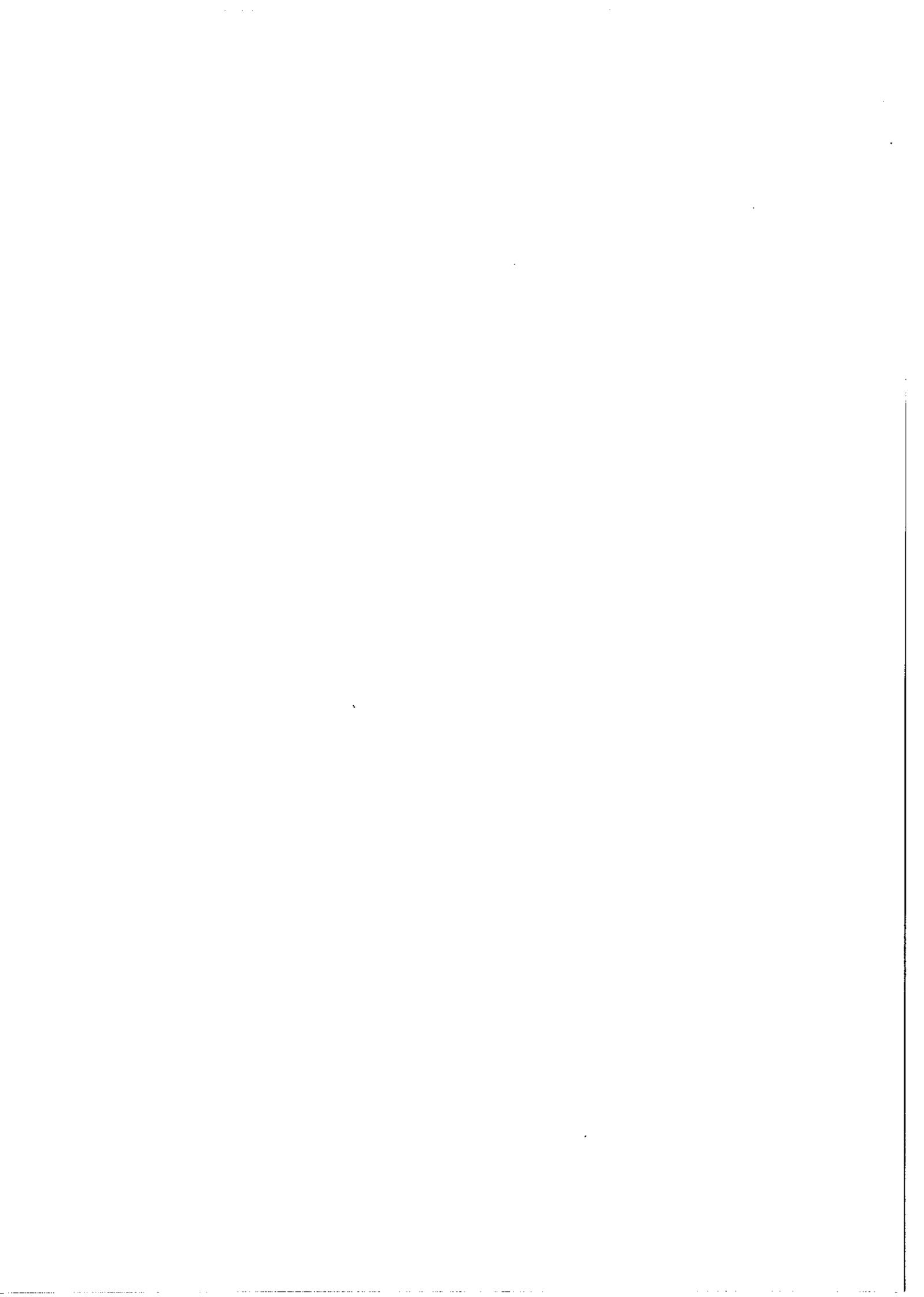
ces deux applications particulières sont étroitement liées. La première expérience permet aussi une étude des effets des collisions par la mesure de l'élargissement (et éventuellement du déplacement) du profil de saturation. Une variante de la seconde expérience peut conduire elle aussi à l'étude de ce profil et en particulier à son évolution dans le temps ; elle peut être utilisée tout comme la première, à des études de structures hyperfines à très haute résolution, cette fois à l'aide d'un seul faisceau.

Dans un chapitre consacré à quelques aspects théoriques de la saturation de l'absorption nous avons montré les problèmes posés par l'emploi de ces méthodes à l'étude des structures dans lesquelles les composantes sont liées par des niveaux communs (structures hyperfines, structures Zeeman). Les modifications dans les intensités relatives des composantes et l'existence de composantes parasites d'intensités mal définies rendent difficile l'interprétation des structures enregistrées, en particulier lorsqu'elles ne sont pas complètement résolues, comme c'est le cas dans la transition étudiée du baryum. Ces méthodes ne semblent donc intéressantes pour ces structures que lorsqu'elles sont bien résolues du point de vue de la largeur homogène et dans cette hypothèse les composantes parasites peuvent être utilisées à la place de composantes normales d'intensité trop faible ou situées en dehors de la plage spectrale balayée par la source laser. Des enregistrements effectués à différents degrés de saturation doivent permettre d'identifier les composantes normales sans ambiguïté.

L'application de ces méthodes ne se limite pas à l'étude des

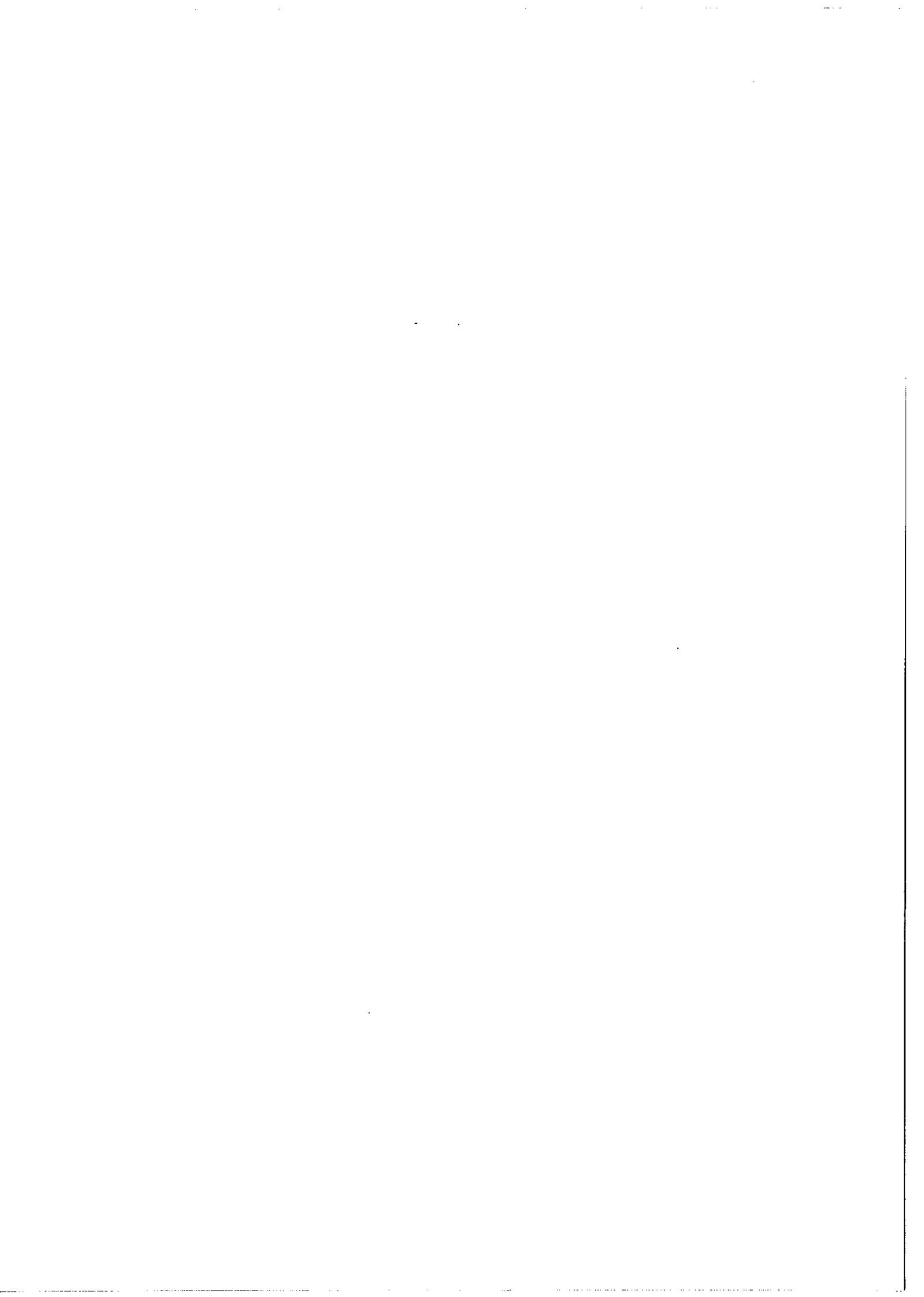
multiplets hyperfins serrés. Elles conviennent bien à la mesure d'écartis isotopiques très faibles. Dans ce cas les intensités relatives sont respectées quel que soit le degré de saturation et il n'y a pas de résonances parasites. Elles sont particulièrement intéressantes lorsque l'on ne peut disposer d'isotopes purs séparés. La mesure des facteurs de Landé en champ magnétique faible est également possible. Enfin nous avons montré la possibilité d'étudier les effets des collisions soit à partir du profil enregistré, qui est approximativement le profil homogène, soit de façon dynamique lorsque l'on dispose de sources laser fonctionnant en impulsions.

D'une façon générale les méthodes d'absorption saturée, purement optiques, sont applicables non seulement à des transitions issues des niveaux fondamentaux ou thermiquement peuplés mais aussi, sans difficulté particulière, à des transitions issues de niveaux excités élevés. Le cas des transitions donnant lieu à l'effet laser est particulièrement favorable pour opérer dans de bonnes conditions. Les progrès récents réalisés dans le domaine des lasers à longueur d'onde variable vont permettre une extension importante de ces méthodes.



Appendice de la 1ère partie

ETUDE DU FABRY-PEROT SPHERIQUE MULTIPASSAGES.



Nous analysons ici quelques propriétés du Fabry-Perot multipassages dans trois applications bien particulières. Deux d'entre elles concernent une utilisation en réflexion de l'interféromètre. Dans la première le but est la mesure de pouvoirs réflecteurs élevés (proches de l'unité) ; le flux lumineux incident est supposé continu. Dans la seconde la source lumineuse fonctionne en impulsions et l'interféromètre sert de ligne à retard optique. Dans ces deux usages le dispositif ne fonctionne pas réellement en interféromètre ; comme nous allons le voir les interférences, en général, n'existent pas. La troisième application concerne une utilisation en transmission du Fabry-Perot. Il s'agit cette fois réellement d'un interféromètre mais soumis à un faisceau lumineux dont la durée est de l'ordre de grandeur du temps de parcours du système par la lumière. Cette application correspond effectivement au Fabry-Perot que nous utilisons pour calibrer la fréquence de notre laser source.

A) FABRY-PEROT MULTIPASSAGES EN REFLEXION.

1) Application à la mesure de pouvoirs réflecteurs élevés.

L'interféromètre que nous envisageons ici (fig. 1A) est constitué de deux miroirs sphériques de rayon de courbure R et placés à la distance D l'un de l'autre telle qu'on réalise une configuration de spots fermée après N doubles passages. L'un des miroirs présente un

secteur de pouvoir réflecteur r connu . Le reste de sa surface est traité à $R \neq 1$ dont la valeur exacte est à mesurer. L'autre miroir est traité à R sur toute sa surface. Le point d'incidence du faisceau d'entrée (faisceau laser émettant en continu) est situé sur le secteur pour lequel on prendra en général r nettement inférieur à 1. On recueille sur un récepteur l'ensemble de la lumière réfléchie (celle directement réfléchie par le secteur et celle qui sort de l'interféromètre après chaque parcours complet).

Dans le cas d'un système parfaitement stable (onde incidente de fréquence bien définie et surtout chemin optique très stable) les faisceaux sortants successifs interfèrent et l'amplitude qui en résulte est :

$$A_R = a_0 (r_1 e^{j\varphi_0} - t_1^2 r_2 e^{-j\varphi} - t_1^2 r_1 r_2^2 e^{-2j\varphi} - \dots)$$

expression dans laquelle a_0 est l'amplitude du faisceau incident , φ_0 le déphasage à la première réflexion, φ le déphasage commun entre deux faisceaux émergents successifs. Pour simplifier les notations on a posé :

$$r_1 = \sqrt{r} \qquad r_2 = \sqrt{R^{2N-1}}$$

En fait, si on ne prend pas de précaution particulière , les instabilités du chemin optique sont telles que tout se passe comme si les ondes successives étaient incohérentes et on peut directement raisonner sur les énergies. De plus si le pouvoir réflecteur du secteur d'entrée n'est pas trop élevé, les pertes sont négligeables :

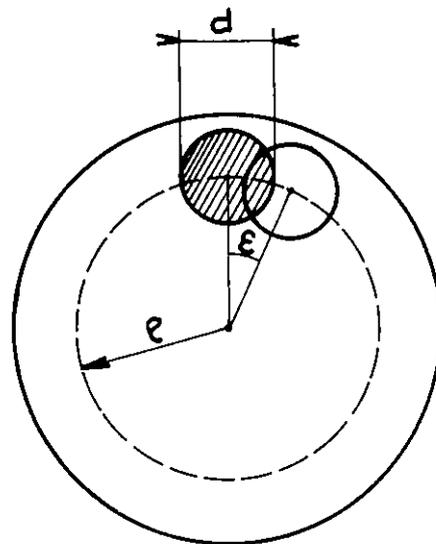
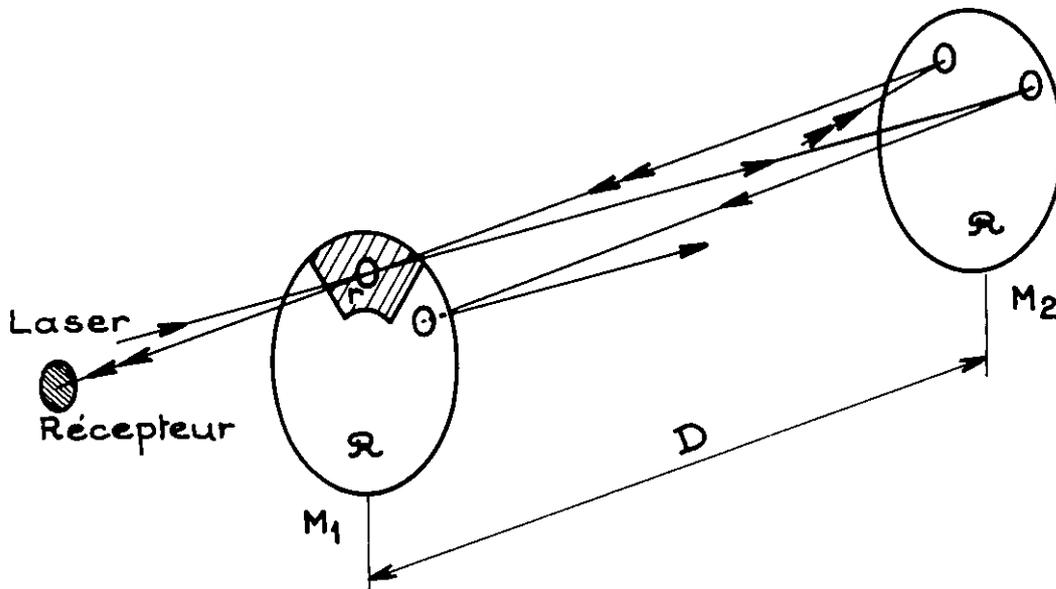
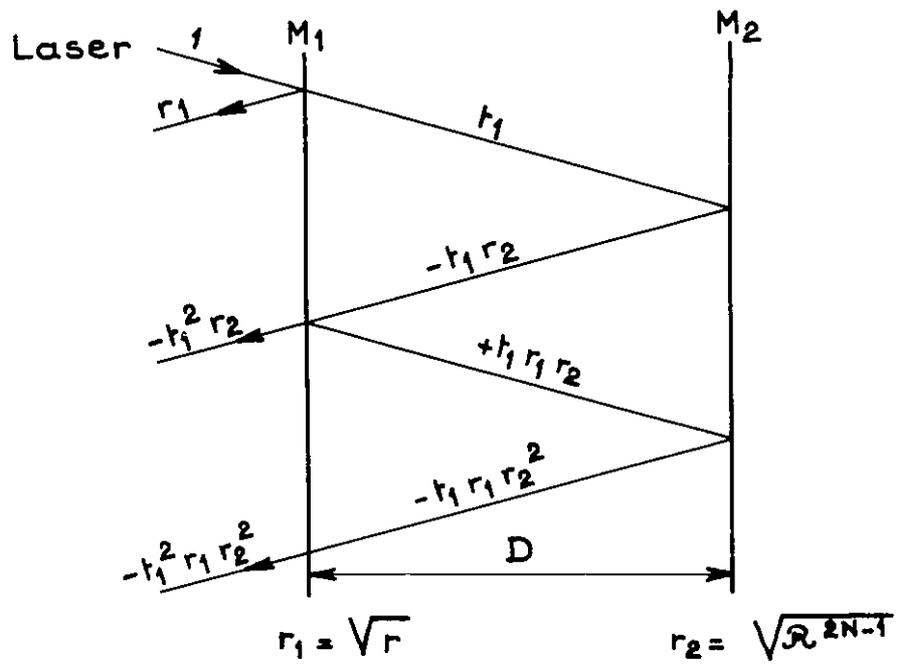
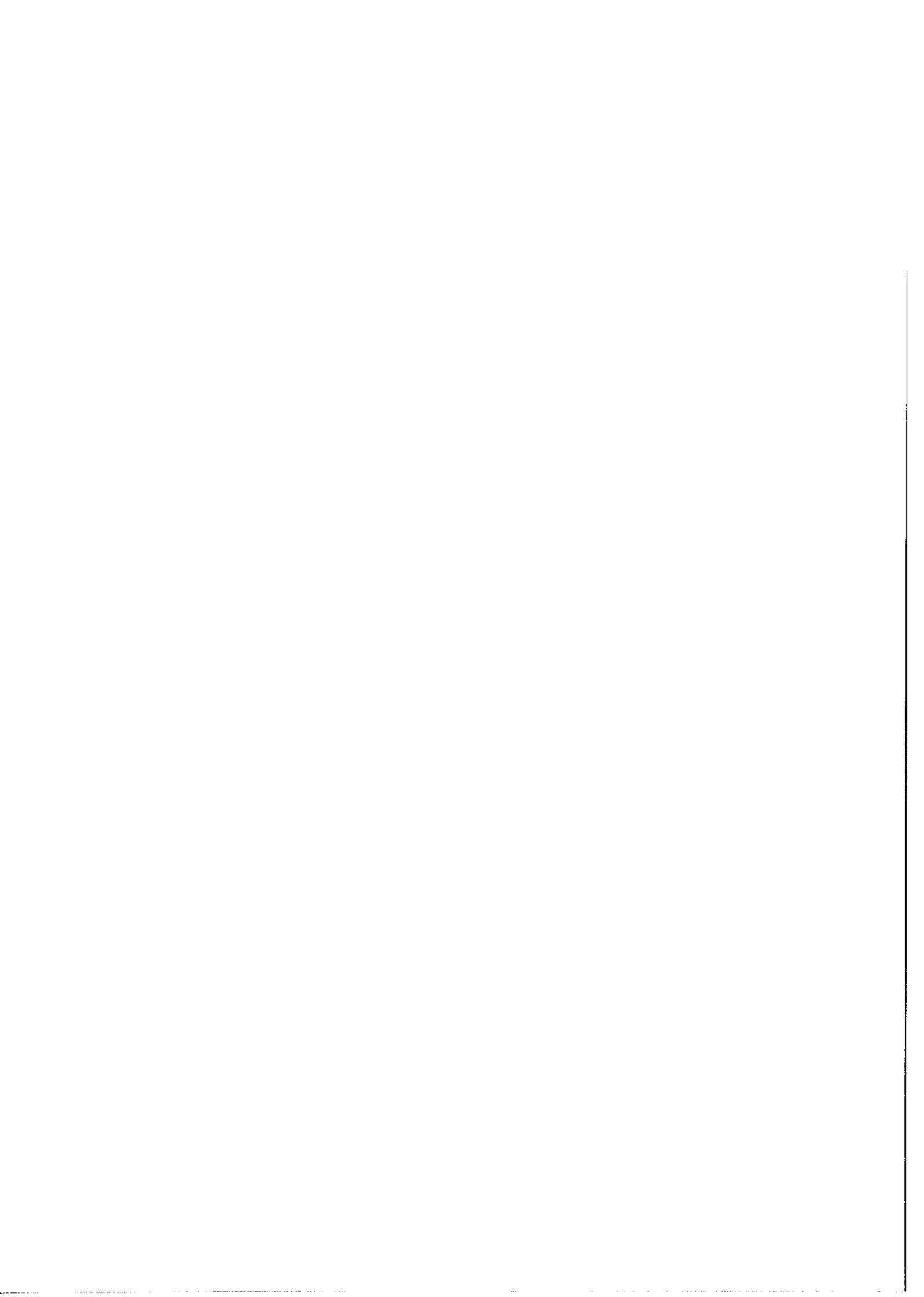


Figure 1A

F.P.M.P. en réflexion - Mesure des pouvoirs réflecteurs élevés.



$r + t = 1$ et $\varphi_0 = 0$ (1). On en déduit, pour l'intensité totale réfléchie par le système, rapportée à l'intensité incidente I_0 :

$$\frac{I_R}{I_0} = r + \frac{(1-r)^2 R^{2N-1}}{1-r R^{2N-1}} = 1 - \frac{(1-r)(1-R^{2N-1})}{1-r R^{2N-1}}$$

Expérimentalement la mesure de R s'effectue de la façon suivante. On mesure d'abord I_R puis, le second miroir étant obturé, on mesure l'intensité de la lumière directement réfléchie par le secteur. De ces deux mesures on déduit la quantité :

$$y = \frac{I_R - r}{r} = \frac{(1-r)^2}{r} \times \frac{R^{2N-1}}{1-rR^{2N-1}}$$

(1) Dans le cas où r est lui aussi élevé, l'absorption joue un rôle: $t < 1-r$ et $\varphi_0 \neq 0$. Le calcul de l'intensité réfléchie à partir de l'expression de A_R donne :

$$\frac{I_R}{I_0} = \frac{r + (t^2 + r^2) R^{2N-1} + 2rtR^{2N-1} \cos \varphi_0 - 2\sqrt{rR^{2N-1}}(t \cos(\varphi + \varphi_0) + r \cos \varphi)}{1 + rR^{2N-1} - 2\sqrt{rR^{2N-1}} \cos \varphi}$$

Si φ_0 et $t + r = 1$ on retrouve l'expression classique d'un Fabry-Perot utilisé en réflexion de pouvoir réflecteur r et R^{2N-1}

$$\frac{I_R}{I_0} = \frac{r + R^{2N-1} - 2\sqrt{rR^{2N-1}} \cos \varphi}{1 + rR^{2N-1} - 2\sqrt{rR^{2N-1}} \cos \varphi}$$

La moyenne sur φ de cette expression donne bien le résultat obtenu directement ci-dessus en raisonnant sur les intensités seules.

qui donne finalement :

$$\mathcal{R} = \left[\frac{1}{r} \times \frac{1}{1 + \frac{1}{y} \left(\frac{1-r}{r} \right)^2} \right] \frac{1}{2N-1}$$

En pratique on prend pour r une valeur assez moyenne (pour un miroir à couches multidiélectriques $r=0,7$ correspond par exemple à trois couches d'épaisseur $\frac{\lambda}{4}$). La mesure de r par les procédés classiques (mesure de la transmission) peut être alors suffisamment précise, l'absorption étant négligeable.

Nous avons appliqué la méthode aux miroirs utilisés dans la seconde expérience d'absorption saturée (étude dynamique des effets des collisions). Ces miroirs sont traités à $1,5 \mu\text{m}$. Comme nous ne disposons pas de source laser continue à cette longueur d'onde nous avons en fait mesuré \mathcal{R} dans le premier sous-multiple impair en longueur d'onde à l'aide de l'une des raies émises par un laser à argon ionisé ($\lambda = 5\ 017 \text{ \AA}$). La mesure a donné $\mathcal{R}_{5017\text{\AA}} = 0,98$ (pour \mathcal{R} le traitement correspond à treize couches d'épaisseur $\frac{\lambda}{4}$ à $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$).

Remarque :

La méthode n'exige pas pour être appliquée l'emploi de miroirs à secteurs. Si les deux miroirs sont traités avec le même pouvoir réflecteur \mathcal{R} sur l'ensemble de leur surface, on a :

$$y = (1-\mathcal{R})^2 \frac{\mathcal{R}^{2N-2}}{1-\mathcal{R}^{2N}}$$

Mais y est alors très inférieur à l'unité et une mesure précise de \mathcal{R} est plus difficile. De plus la relation ci-dessus n'est plus rigoureuse puisqu'alors en général $t < 1-r$. Comme dans les méthodes classiques on retrouve le problème de la détermination de l'absorption.

Précision des résultats

De l'expression de R donnée ci-dessus on déduit aisément

$$\frac{\Delta R}{R} \ll \frac{1}{2N-1} R^{2N-1} \left\{ \frac{1}{y} \left(\frac{1-r}{r} \right)^2 \times \frac{\Delta y}{y} + \left| r - \frac{1}{y} \times \frac{1-r^2}{r} \right| \frac{\Delta r}{r} \right\}$$

En pratique nous avons pris $r \# 0,7$; la précision sur la mesure de r est alors de l'ordre de $\Delta r \# 0,005$. La précision sur y donnée par deux mesures successives est plus difficile à évaluer. Cependant une valeur raisonnable peut être $\Delta y \# 0,01$. Pour $R = 0,99$ et $N = 11$ on obtient

$$\frac{\Delta R}{R} \# 2 \cdot 10^{-3}$$

En fait la grandeur la plus significative est $\frac{\Delta R}{1-R}$ (comparaison de R à l'unité), soit ici

$$\frac{\Delta R}{1-R} \# 10^2 \frac{\Delta R}{R} \# 0,2$$

Pour des valeurs plus extrêmes de r (proches de l'unité ou très faibles) la précision est moindre. Ainsi dans les mêmes conditions que ci-dessus pour les autres grandeurs, on a :

pour $r = 0,90$	$\frac{\Delta R}{R} \# 6 \cdot 10^{-3}$
$r = 0,50$	$\frac{\Delta R}{R} \# 1,5 \cdot 10^{-3}$
$r = 0,30$	$\frac{\Delta R}{R} \# 1 \cdot 10^{-2}$

Ces valeurs montrent que sans être très exigeant sur la précision de la mesure de r la méthode est précise à condition de prendre N assez élevé et une valeur très moyenne pour r . De plus on obtient directement le pouvoir réflecteur et non la transmission.

Ce calcul d'erreur ne tient pas compte d'un éventuel dérèglement de l'interféromètre. Supposons par exemple que par suite d'une incertitude sur le rayon de courbure des miroirs (ou sur leur distance, ce qui revient au même) la relation $\cos \theta = 1 - \frac{D}{R}$ entraîne pour θ une valeur ne satisfaisant pas à la condition de fermeture $2N\theta = 2k\pi$. Alors la figure des spots ne se referme pas. Le récepteur "voit" des faisceaux successifs décalés sur sa surface ce qui entraîne une erreur systématique sur la mesure. Il est difficile de prévoir numériquement la conséquence d'une telle incertitude. On peut cependant, par le calcul suivant, avoir une idée de la précision nécessaire sur le rayon de courbure pour que l'effet soit négligeable.

Une incertitude ΔR sur R rayon de courbure entraîne une incertitude sur l'angle polaire $\Delta\theta = \frac{D}{2 \sin \theta} \cdot \frac{\Delta R}{R^2}$. Pour N doubles passages l'angle polaire du spot de sortie par rapport au spot d'entrée n'est plus $2k\pi = N \times 2\theta$ mais $2k\pi + \varepsilon$ avec $\varepsilon = 2N\Delta\theta$. Soit d le diamètre des spots et ρ le rayon du cercle sur lequel ils se répartissent. On considèrera le réglage comme bon si $\frac{\varepsilon\rho}{d} \ll 1$ (fig. 1A).

Des relations précédentes on déduit $\frac{\Delta R}{R} \ll \frac{R}{D} \cdot \frac{d}{\rho} \cdot \frac{\sin \theta}{N}$. Dans notre cas $N = 11$ $R = 11,82$ mètres $D = 4,08$ mètres $\theta \approx 49^\circ$ $d = 2$ mm et $\rho = 20$ mm on trouve $\frac{\Delta R}{R} \ll 2 \cdot 10^{-2}$. En prenant un facteur 10 pour l'inégalité on en déduit que R doit être déterminé au centimètre près.

Une autre source d'erreur possible provient des défauts de surface des miroirs. Localement le rayon de courbure peut différer d'un point à un autre. Le résultat est encore une figure non fermée pour

les spots mais l'effet est difficilement calculable sans la connaissance précise des défauts eux-mêmes.

2) Ligne à retard optique :

Lorsque le dispositif que nous venons de décrire est soumis à une impulsion lumineuse brève, c'est-à-dire dont la durée est très inférieure au temps de parcours total du Fabry-Perot par la lumière, on obtient pour la lumière réfléchie une succession d'impulsions lumineuses. La première correspond à la réflexion directe sur le secteur et les suivantes (échos) correspondent aux ondes de sortie successives après chaque parcours complet de l'interféromètre (fig. 2A). Le retard entre deux échos successifs est :

$$\Delta t = \frac{2ND}{c}$$

et bien entendu il n'y a plus d'interférence possible entre les faisceaux de sortie. Nous avons utilisé ce dispositif dans la seconde expérience d'absorption saturée (Chap. IV). Dans cette expérience le premier faisceau réfléchi sert à saturer un milieu absorbant. Les échos successifs analysent l'évolution dans le temps de la perturbation due à la saturation. Pour cela on cherche à disposer d'un faisceau saturant $(I_R)_0$ aussi intense que possible. Il est souhaitable que les échos successifs aient des intensités voisines. Enfin leur intensité doit être assez faible pour ne pas perturber le milieu, mais toutefois suffisamment importante pour que l'on dispose d'un rapport Signal/bruit convenable. Nous analysons ici le choix de r , R et N dont dépendent les intensités.

VIII

Les intensités des faisceaux, rapportées à l'intensité I_0 du faisceau incident sont (on suppose nulles les pertes à l'entrée sur le secteur) :

faisceau directement réfléchi	$\frac{(I_R)_0}{I_0} = r$
premier écho	$\frac{(I_R)_1}{I_0} = (1-r)^2 \mathcal{R}^{2N-1}$
$n^{\text{ième}}$ écho	$\frac{(I_R)_n}{I_0} = (1-r)^2 (\mathcal{R}^{2N-1})^n r^{n-1}$

Deux rapports sont intéressants :

le rapport de l'intensité du premier écho à celle du premier faisceau réfléchi

$$\rho_1 = \frac{(I_R)_1}{(I_R)_0} = \frac{(1-r)^2}{r} \mathcal{R}^{2N-1}$$

le rapport des intensités de deux échos successifs

$$\rho_2 = \frac{(I_R)_{n+1}}{(I_R)_n} = r \mathcal{R}^{2N-1}$$

Il est évident que pour r donné on peut utiliser un nombre d'autant plus grand d'échos que \mathcal{R} est voisin de l'unité. Il est donc essentiel d'avoir pour \mathcal{R} la valeur maximum permise par les techniques des couches minces. En pratique, dans l'infrarouge proche \mathcal{R} peut atteindre 99,5% à 99,7% environ. Notons que des valeurs moins bonnes pour \mathcal{R} peuvent être compensées en choisissant une configuration à un nombre de doubles passages plus faible, mais ceci n'est pas toujours compatible avec le retard Δt , en général imposé par l'expérience ; de plus on est alors souvent conduit pour des Δt élevés à un encombrement prohibitif pour la ligne à retard. Comme le montre la figure 2A

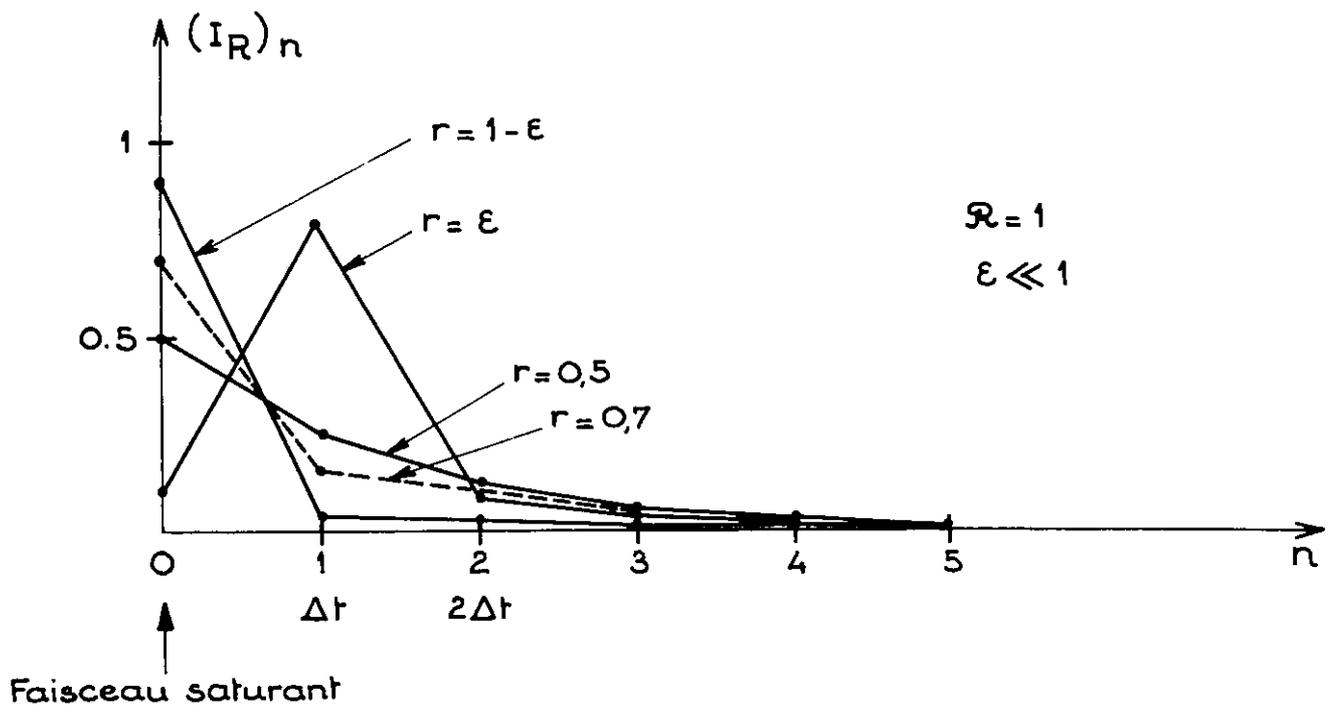
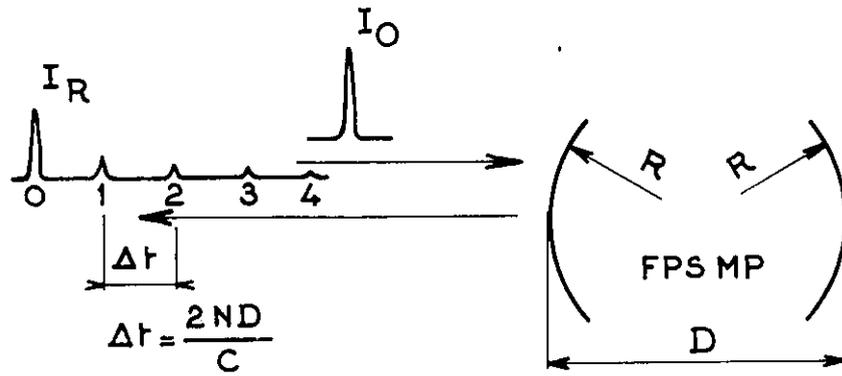
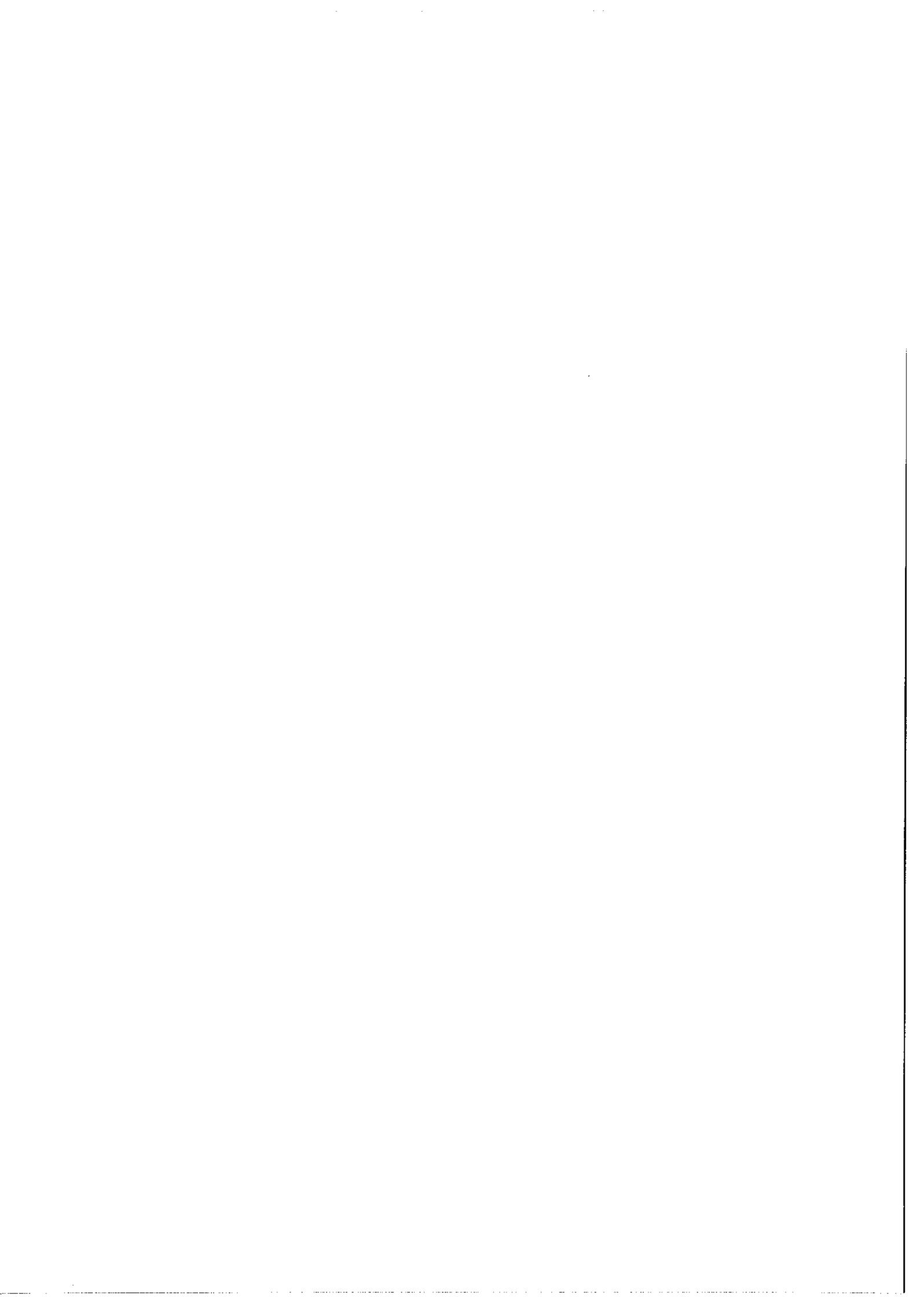


Figure 2A

F.P.M.P. en réflexion - Utilisation en ligne à retard.



le choix de r est moins évident. Pour ne pas trop atténuer le faisceau saturant on a intérêt à prendre r élevé ; les échos successifs (faisceaux sonde) sont d'amplitude voisine mais très faible. Un très bon rapport Signal/bruit est nécessaire pour y détecter de petites variations. A l'opposé, des valeurs faibles de r conduisent à un premier écho plus intense que le faisceau saturant. En pratique, comme dans l'application précédente, on est amené à donner à r une valeur intermédiaire entre les deux extrêmes. Cette valeur dépend des conditions de rapport Signal/bruit de l'expérience. Il est donc finalement difficile d'obtenir des échos successifs d'intensités à la fois voisines et assez élevées pour être détectés dans de bonnes conditions.

Notons qu'un jeu unique de miroirs de rayon de courbure donné permet de réaliser un grand nombre de combinaisons possibles. Pour un domaine de variation de D donné on peut calculer toutes les distances possibles correspondant à une configuration fermée. La figure 3A présente les résultats classés par retards décroissants pour les miroirs utilisés dans notre expérience ($R = 11,82$ mètres) et pour $\Delta t < 335$ nsec.⁽¹⁾ le tableau permet de choisir le meilleur compromis possible pour un domaine de Δt donné en tenant compte du nombre de réflexions intermédiaires et de l'encombrement.

Remarque :

Lorsqu'on dispose d'une source lumineuse fonctionnant en impulsions, la mesure des rapports ρ_1 ou ρ_2 donne R connaissant r .

(1) Le calcul sur ordinateur a été effectué au laboratoire par Mme M. G. Schweighofer.

En pratique il est préférable d'utiliser ρ_2 . En effet dans ρ_1 , $(I_R)_0$ et $(I_R)_1$ sont d'intensités très différentes et des effets de non linéarité du détecteur peuvent entraîner une erreur systématique, $(I_R)_{n+1}$ et $(I_R)_n$ sont eux d'intensité plus comparable et de plus on dispose de plusieurs rapports successifs. Pour nos miroirs (treize couches $\frac{\lambda}{4}$ à $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$) nous avons trouvé pour $r = 0,67$ et $N=11$ $\rho_2 = 0,54$ soit $R_{1,5\mu\text{m}} = 0,99$. La précision de cette méthode est inférieure à celle du paragraphe 1 ; une mesure très précise des intensités de crête est assez délicate.

B) FABRY-PEROT EN TRANSMISSION.

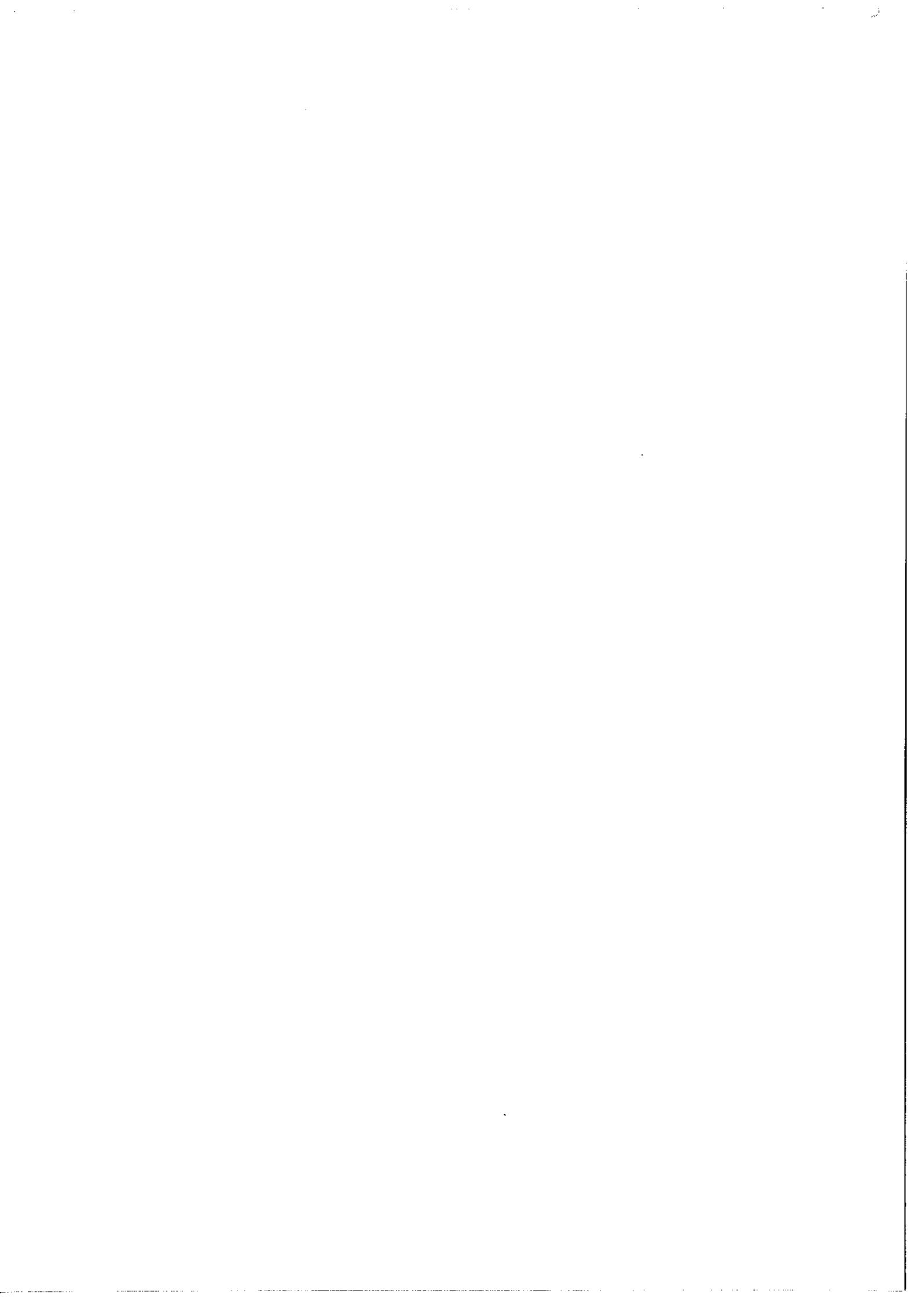
Calcul du taux de modulation lorsque l'interféromètre est soumis à une impulsion lumineuse.

Nous envisageons maintenant un interféromètre travaillant en transmission. Comme l'indique la figure 4A l'un des miroirs est traité sectoriellement mais cette fois le secteur, de pouvoir réflecteur r , correspond aux faisceaux entrée-sortie (r est de valeur moyenne, inférieure à l'unité). Nous supposons ce dispositif soumis à une impulsion lumineuse dont la durée est de l'ordre de Δt , temps de parcours total de l'interféromètre par la lumière. Cette situation correspond précisément au cas du Fabry-Perot que nous avons utilisé pour calibrer la fréquence du laser. Nous nous intéressons ici au taux de modulation des franges données par l'appareil (1ère partie, paragr. C). Pour

K	N	D(m.)	Δt (ns.)	K	N	D(m.)	Δt (ns.)	K	N	D(m.)	Δt (ns.)
6.	41.	1.226	335.134	3.	22.	1.067	156.506	1.	11.	.478	35.076
5.	29.	1.690	326.787	4.	41.	.550	150.415	2.	45.	.115	34.475
3.	10.	4.868	324.521	3.	23.	.978	147.896	2.	47.	.105	33.012
6.	43.	1.116	320.060	4.	43.	.501	143.522	1.	12.	.402	32.188
4.	19.	2.490	315.391	3.	25.	.829	138.202	2.	49.	.097	31.668
2.	4.	11.811	314.949	2.	11.	1.875	137.466	1.	13.	.343	29.737
10.	4.	11.773	313.945	4.	45.	.457	137.228	1.	14.	.290	27.532
5.	31.	1.484	306.642	3.	26.	.767	133.005	1.	15.	.258	25.803
3.	11.	4.076	298.832	4.	47.	.420	131.459	1.	16.	.227	24.201
5.	32.	1.394	297.452	4.	49.	.380	126.154	1.	17.	.201	22.786
6.	47.	.937	293.587	3.	28.	.663	123.692	1.	18.	.179	21.527
5.	33.	1.313	288.785	3.	29.	.610	119.503	1.	19.	.161	20.399
4.	21.	2.052	287.257	5.	3.	5.937	118.744	1.	20.	.145	19.384
6.	49.	.863	281.907	1.	3.	5.905	118.091	1.	21.	.132	18.464
5.	34.	1.238	280.599	7.	3.	5.872	117.440	1.	22.	.120	17.628
8.	5.	8.196	273.203	3.	13.	1.353	117.222	1.	23.	.110	16.864
2.	5.	8.160	272.009	3.	31.	.542	111.916	1.	24.	.101	16.163
5.	36.	1.106	265.521	3.	32.	.506	106.470	1.	25.	.093	15.518
4.	23.	1.719	263.589	3.	34.	.451	102.174	1.	26.	.086	14.923
5.	37.	1.048	258.564	2.	15.	1.021	102.087	1.	27.	.080	14.372
5.	13.	2.970	257.376	3.	35.	.426	99.290	1.	28.	.074	13.859
5.	38.	.995	251.956	3.	37.	.381	93.983	1.	29.	.069	13.382
5.	39.	.943	245.673	4.	4.	3.485	92.942	1.	30.	.065	12.937
4.	25.	1.461	243.434	7.	4.	3.459	92.231	1.	31.	.061	12.521
3.	14.	2.576	240.449	1.	38.	.361	91.535	1.	32.	.057	12.130
5.	41.	.856	233.991	3.	4.	3.432	91.523	1.	33.	.053	11.763
5.	42.	.816	228.551	9.	4.	.797	90.370	1.	34.	.050	11.417
4.	27.	1.250	226.082	2.	17.	.326	87.002	1.	35.	.048	11.092
5.	43.	.779	223.356	3.	40.	.311	84.899	1.	36.	.045	10.784
5.	44.	.745	218.389	3.	41.	.311	84.899	1.	37.	.043	10.493
3.	16.	1.990	212.274	2.	19.	.640	81.041	1.	38.	.040	10.217
4.	29.	1.091	210.998	3.	43.	.202	80.963	1.	39.	.038	9.955
5.	46.	.682	209.083	3.	44.	.270	79.156	1.	40.	.036	9.707
2.	7.	4.443	207.487	5.	5.	2.277	75.913	1.	41.	.035	9.470
5.	47.	.653	204.718	3.	46.	.247	75.739	1.	42.	.033	9.245
5.	48.	.627	200.530	1.	5.	2.255	75.174	1.	43.	.032	9.030
3.	17.	1.769	200.451	2.	31.	.242	49.954	1.	44.	.030	8.825
4.	31.	.957	197.772	1.	8.	.699	47.930	1.	45.	.029	8.629
5.	49.	.602	196.508	2.	33.	.213	46.945	1.	46.	.028	8.442
4.	33.	.840	186.086	2.	35.	.190	44.277	1.	47.	.026	8.252
3.	19.	1.423	180.273	1.	9.	.712	42.727	1.	48.	.025	8.090
4.	35.	.753	175.688	2.	37.	.170	41.896	1.	49.	.024	7.925
3.	20.	1.287	171.603	2.	39.	.153	39.757	1.	50.	.023	7.767
4.	37.	.673	165.379	1.	10.	.578	38.529	1.	0.	.020	0.000
2.	7.	2.763	165.760	2.	41.	.130	37.525	0.			
4.	39.	.608	157.999	2.	43.	.126	36.072	0.			

Figure 3A

Configurations fermées possibles pour $0 \leq \Delta t \leq 335$ nsec. avec des miroirs de 11,82 m. de rayon de courbure.



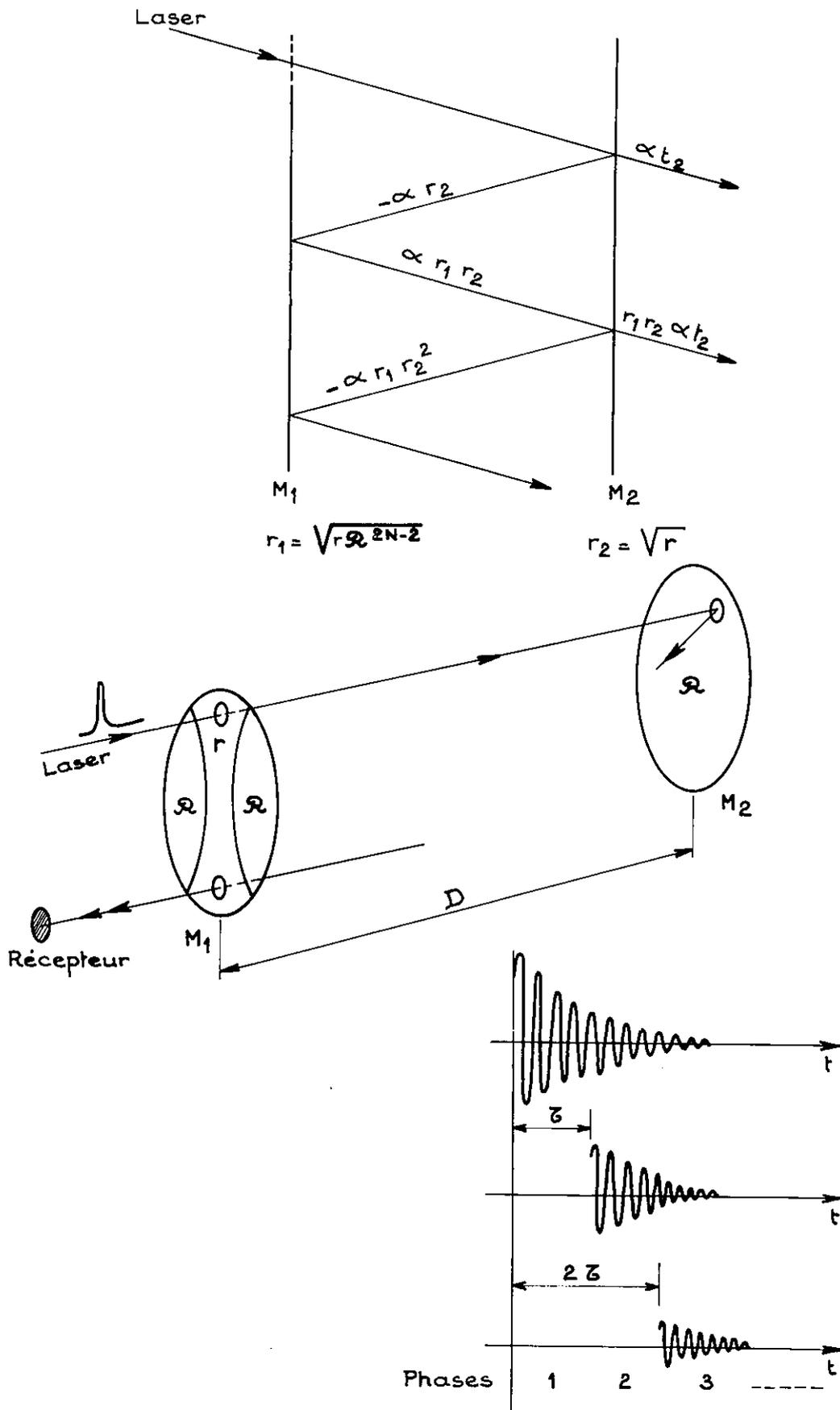
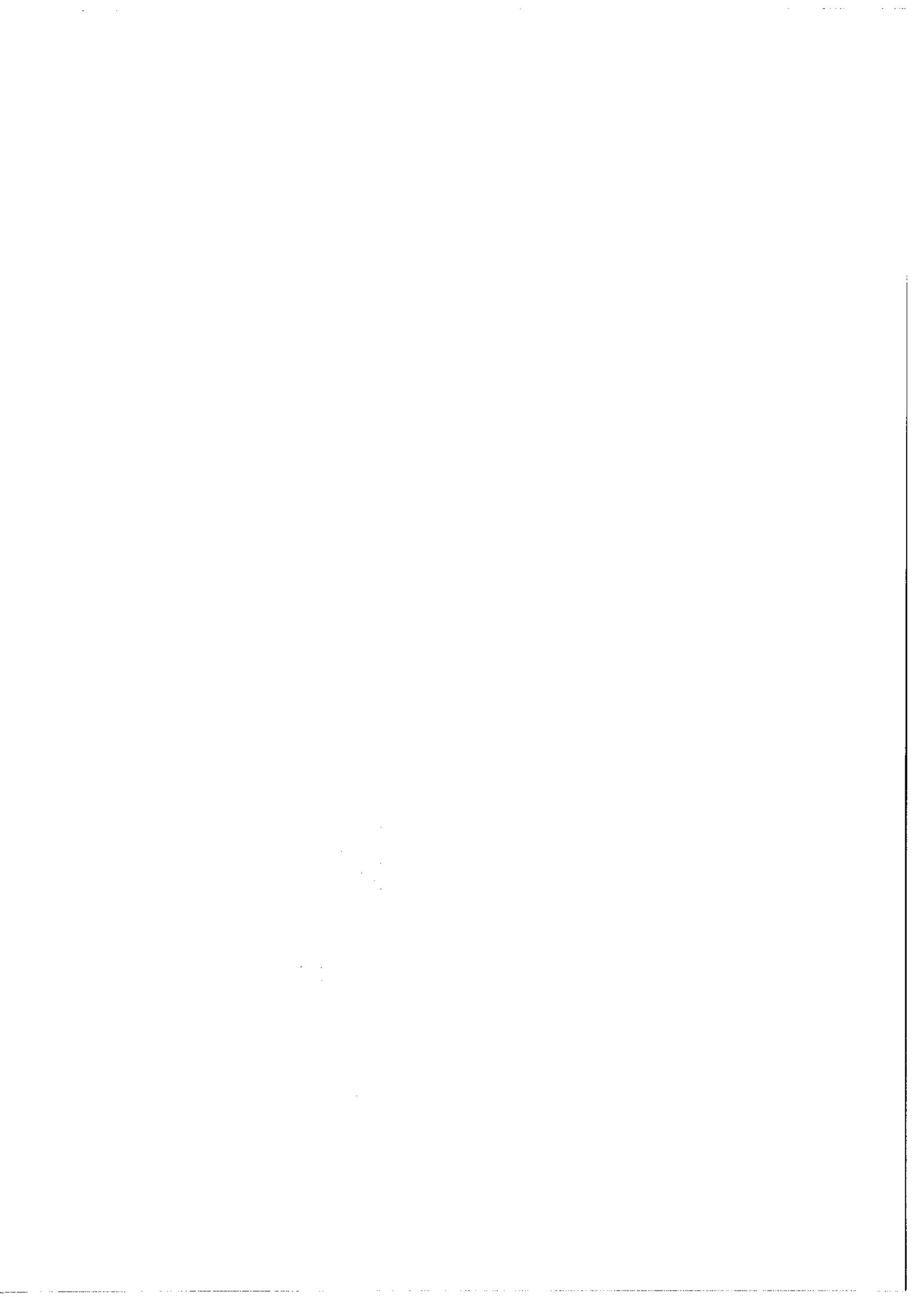


Figure 4A

F.P.M.P. en transmission soumis à une impulsion lumineuse.



simplifier les calculs nous considérons une impulsion lumineuse à front de montée infiniment raide et à décroissance exponentielle. La constante d'amortissement pour l'énergie est notée θ .

Considérons les phases successives pour lesquelles le récepteur reçoit le signal après un parcours, puis la somme des signaux après un et deux parcours, etc... (fig. 4A). A un coefficient commun près α_2 correspondant aux pertes lors de la première traversée partielle ⁽¹⁾, les amplitudes correspondantes sont :

Phases	Amplitudes
1	1
2	$e^{-\frac{\Delta t}{2\theta}} + r_1 r_2 e^{-j\varphi}$
3	$e^{-\frac{2\Delta t}{2\theta}} + r_1 r_2 e^{-\frac{\Delta t}{2\theta}} e^{-j\varphi} + r_1^2 r_2^2 e^{-2j\varphi}$
n	$e^{-\frac{(n-1)\Delta t}{2\theta}} + r_1 r_2 e^{-\frac{(n-2)\Delta t}{2\theta}} e^{-j\varphi} + r_1^{n-1} r_2^{n-1} e^{-(n-1)j\varphi}$

Pour la phase n l'amplitude est

$$\frac{e^{-\frac{n\Delta t}{2\theta}} - r_1^n r_2^n e^{-jn\varphi}}{e^{-\frac{\Delta t}{2\theta}} - r_1 r_2 e^{-j\varphi}}$$

soit pour l'intensité :

(1) Nous n'explicitons pas ici α . Ce coefficient est fonction de r , R et N et dépend de la configuration choisie. Il n'intervient pas dans l'expression finale du taux de modulation.

$$\frac{e^{-\frac{2n\Delta t}{2\theta}} + r_1^{2n} r_2^{2n} - e^{-\frac{n\Delta t}{2\theta}} r_1^n r_2^n \{e^{jn\varphi} + e^{-jn\varphi}\}}{e^{-\frac{\Delta t}{\theta}} + r_1^2 r_2^2 - 2r_1 r_2 e^{-\frac{\Delta t}{2\theta}} \cos \varphi}$$

En posant $x = e^{-\frac{\Delta t}{2\theta}}$ et $R = r_1 r_2 = r \rho^{N-1}$ la somme de toutes les contributions élémentaires donne :

$$\Sigma = \frac{1}{x^2 + R^2 - 2Rx \cos \varphi} \left[\frac{x^2}{1-x^2} + \frac{R^2}{1-R^2} - \frac{2Rx(\cos \varphi - Rx)}{1 + R^2 x^2 - 2Rx \cos \varphi} \right]$$

Il faut maintenant tenir compte du fait que le récepteur n'est sensible qu'à l'énergie proportionnelle à l'intensité mais pondérée pour chaque contribution élémentaire par la décroissance en $e^{-\frac{t}{\theta}}$ du signal.

L'intégration sur un intervalle de temps égal à τ (le même pour toutes les phases) donne un coefficient commun $1 - e^{-\frac{\Delta t}{\theta}}$ (on prend égale à l'unité l'énergie transportée par le faisceau lui-même). Finalement le signal transmis s'écrit :

$$S(\varphi) = \alpha^2 t (1-x^2) \Sigma$$

et en posant $m_1 = \frac{4Rx}{(1-Rx)^2}$ et $m_2 = \frac{4Rx}{(x-R)^2}$ on obtient :

$$S(\varphi) = \alpha^2 t \frac{1-x^2}{(x-R)^2} \times \left[1 + \frac{x^2}{1-x^2} + \frac{R^2}{1-R^2} - \frac{1-R^2 x^2}{(1-Rx)^2} \times \frac{1}{1+m_1 \sin^2 \frac{\varphi}{2}} \right] \frac{1}{1+m_2 \sin^2 \frac{\varphi}{2}}$$

Mis sous cette forme le signal apparaît, à une constante multiplicative près, comme le produit d'une fonction d'Airy de finesse $\frac{\pi}{2} \sqrt{m_2}$ par le complément d'une fonction d'Airy de finesse différente $\frac{\pi}{2} \sqrt{m_1}$. Les extremum de $S(\varphi)$ correspondent aux extremum communs à ces deux fonctions ($\varphi=0$ et $\varphi=\pi$ par exemple) et le taux de modulation

$T_m = \frac{S_{\max.} - S_{\min.}}{S_{\max.}}$ est alors :

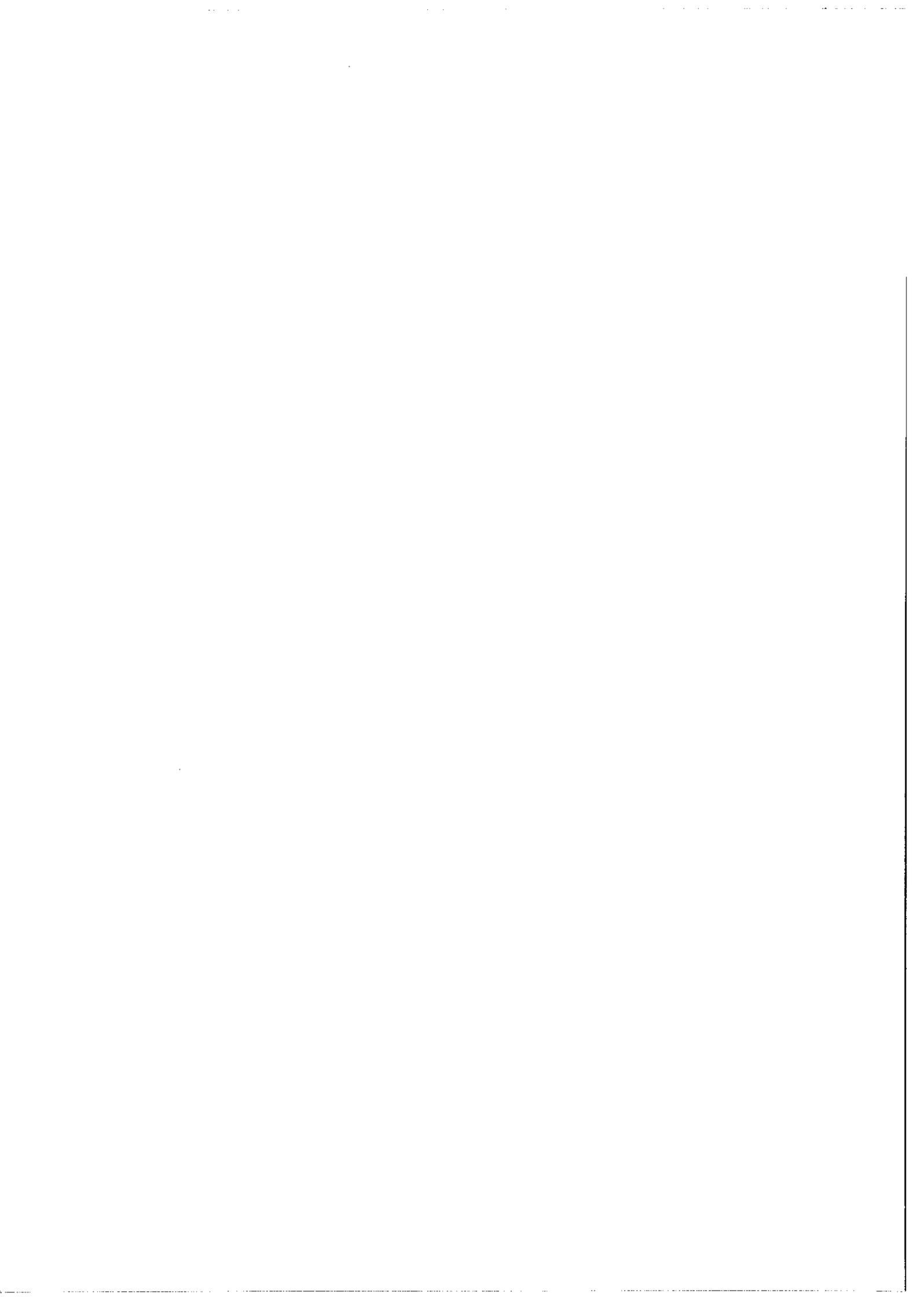
$$T_m = \frac{\left(\frac{x^2}{1-x^2} + \frac{R^2}{1-R^2} \right) \left[\frac{1}{(x-R)^2} - \frac{1}{(x+R)^2} \right] - 2Rx \left[\frac{1}{(1-Rx)(x-R)^2} + \frac{1}{(1+Rx)(x+R)^2} \right]}{\frac{1}{(x-R)^2} \left[\frac{x^2}{1-x^2} + \frac{R^2}{1-R^2} - \frac{2Rx}{1-Rx} \right]}$$

Application numérique :

pour $\theta = \Delta t$ $r = 0,7$ et $R = 0,99$ on a, dans une configuration à huit double passages : $m_1 = 4,33$ $m_2 = 7,5 \cdot 10^2$ et $T_m = 0,84$.

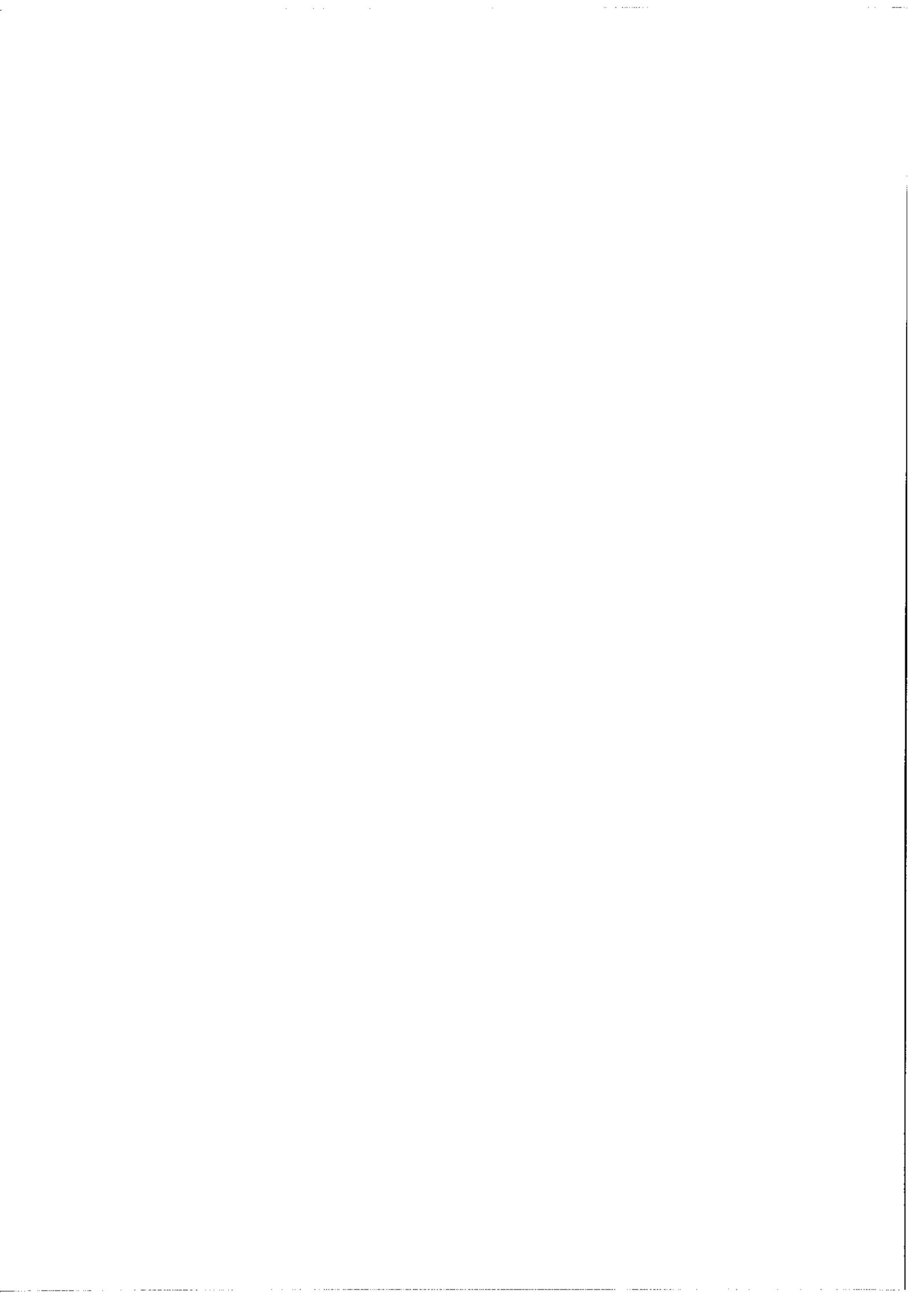
On voit que la modulation reste acceptable même pour des durées d'impulsions aussi brèves que le temps de parcours de l'interféromètre. Ceci est en bon accord avec nos observations expérimentales.

On se reportera aussi à la figure 36c qui montre le signal donné par un détecteur rapide (constante de temps < 10 nsec.) pour une impulsion de 450 nsec. de durée à mi-hauteur et pour $\Delta t = 300$ nsec. On distingue bien sur cette photo prise à l'oscilloscope les phases 1 (sans interférence) et 2 (interférence des deux premières ondes transmises).



Appendice de la seconde partie

ETUDE D'UN SYSTEME A TROIS NIVEAUX



Dans le Chapitre II nous avons traité le cas d'un système à trois niveaux pour une saturation quelconque. Nous étudions ici ce même cas pour une saturation faible mais en tenant compte des termes de cohérence. Nous utilisons la même démarche que Holt qui a étudié le cas d'un système à niveau supérieur commun [63].

Nous nous plaçons encore dans le cas d'un champ sonde faible devant le champ saturant. La largeur Doppler est supposée infinie et l'absorption très faible. Les composantes sont supposées bien séparées du point de vue de la largeur homogène. Enfin les notations sont celles du Chapitre II. Nous effectuons le calcul en termes de matrice densité.

L'équation d'évolution (4) (Chap. II,2) n'est pas modifiée mais les différentes matrices sont maintenant des matrices 3×3 ; par exemple on a :

$$v(z,t) = - \mathcal{P} E(z,t) \begin{pmatrix} 0 & \mathcal{P}_{01} & \mathcal{P}_{02} \\ \mathcal{P}_{01} & 0 & 0 \\ \mathcal{P}_{02} & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

Niveau inférieur commun

L'équation d'évolution s'écrit :

$$\begin{aligned} (1) \quad \dot{\rho}_{00} &= \lambda_0(v) - \gamma_0 \rho_{00} + \beta_{10} \rho_{11} + \beta_{20} \rho_{22} + 2\text{Im} \frac{\mathcal{P}_{01}}{\hbar} E(z,t) \rho_{01} \\ &\quad + 2\text{Im} \frac{\mathcal{P}_{02}}{\hbar} E(z,t) \rho_{02} \\ (2) \quad \dot{\rho}_{11} &= \lambda_1(v) - \gamma_1 \rho_{11} - 2\text{Im} \frac{\mathcal{P}_{10}}{\hbar} E(z,t) \rho_{01} \\ (3) \quad \dot{\rho}_{01} &= -(\gamma_{01} + i\omega_{01})\rho_{01} + \frac{i \mathcal{P}_{20}}{\hbar} E^*(z,t) \rho_{12}^* - \frac{i \mathcal{P}_{10}}{\hbar} E^*(z,t) (\rho_{00} - \rho_{11}) \end{aligned}$$

$$(4) \quad \dot{\rho}_{12} = -(\gamma_{12} + i\omega_{12})\rho_{12} + \frac{i \mathcal{P}_{10}}{\pi} E(z,t)\rho_{02} - \frac{i \mathcal{P}_{20}}{\pi} E^*(z,t)\rho_{01}^*$$

et deux autres équations donnant $\dot{\rho}_{22}$ et $\dot{\rho}_{02}$ obtenues à partir de (2) et (3) en permutant les indices 1 et 2 (dans ces équations $\omega_{0i} = \omega_0 - \omega_i$). On résoud ce système dans l'approximation des ondes tournantes et on pose $\frac{E_-}{E_+} = \varepsilon$ avec $\varepsilon \ll 1$. On écrit le champ sous la forme

$$E(z,t) = E_+ e^{i\omega t} (e^{ikz} + \varepsilon e^{-ikz})$$

et on recherche des solutions stationnaires de la forme :

$$\rho_{0i} = e^{i\omega t} (g_{0i} e^{-ikz} + \varepsilon h_{0i} e^{ikz}) \quad i = 1, 2$$

$$\rho_{21} = \varphi_{21}(v)$$

$$\rho_{ii} = \rho_{ii}(v) \quad i = 0, 1, 2.$$

En remplaçant dans les équations précédentes et en identifiant les termes de même puissance de ε , il vient à la limite $\varepsilon \rightarrow 0$:

$$(1)' \quad \Delta n_{10}(v) = \Delta n_{10}^0(v) - \frac{\mathcal{P}_{10}^{E_+}}{\pi \gamma'_{10}} \text{Im } g_{01} - \frac{\mathcal{P}_{20}}{\pi \gamma''_{10}} \text{Im } g_{02}$$

$$(2)' \quad \Delta_{10}^+(v) g_{01} = -\frac{i \mathcal{P}_{10}^{E_+}}{2\pi} \Delta n_{10}(v) + \frac{i \mathcal{P}_{20}^{E_+}}{2\pi} \varphi_{12}^*(v)$$

$$(3)' \quad \Delta_{10}^-(v) h_{01} = -\frac{i \mathcal{P}_{10}^{E_+}}{2\pi} \Delta n_{10}(v) + \frac{i \mathcal{P}_{20}^{E_+}}{2\pi} \varphi_{12}^*(v)$$

$$(4)' \quad (\gamma_{12} + i\omega_{12})\varphi_{12} = \frac{i \mathcal{P}_{10}^{E_+}}{\pi} g_{02} - \frac{i \mathcal{P}_{10}^{E_+}}{\pi} g_{01}^*$$

et trois autres équations donnant $\Delta n_{20}(v)$, g_{02} et h_{02} obtenues par permutation des indices 1 et 2. Les notations nouvelles par rapport à celles du Chapitre II sont ici :

$$\Delta_{10}^{\pm}(v) = \gamma_{10} - i (\Omega_{10} \pm kv) \quad \text{avec} \quad \Omega_{10} = \omega_{10} - \omega = (\omega_1 - \omega_0) - \omega$$

et de même pour $\Delta_{02}^{\pm}(v)$.

$$\frac{1}{\gamma_{10}''} = \frac{1}{\gamma_0} - \frac{\beta_{10}}{\gamma_1 \gamma_0}$$

Le système ci-dessus se résout itérativement en supposant la saturation faible. (termes de cohérence peu importants). A l'ordre 0 on ne tient pas compte des termes de cohérence (fonction φ_{12}); les équations (2)' et (3)' donnent g_{01} et h_{01} à cet ordre que l'on reporte dans (1)' :

$$\begin{aligned} \Delta n_{10}^{(0)}(v) &= \Delta n_{10}^0(v) - \frac{\mathcal{P}_{10+}^2 E^2}{2\hbar^2 \gamma_{10}'} \times \Delta n_{10}^0(v) \frac{\gamma_{10}}{|\Delta_{10}^+(v)|^2} \\ &\quad - \frac{\mathcal{P}_{20+}^2 E^2}{2\hbar^2 \gamma_{10}''} \times \Delta n_{20}^0(v) \frac{\gamma_{20}}{|\Delta_{20}^+(v)|^2} \end{aligned}$$

avec l'expression analogue pour $\Delta n_{20}^{(0)}(v)$ (permutation des indices 1 et 2).

En reportant $\Delta n_{10}^{(0)}(v)$ et $\Delta n_{20}^{(0)}(v)$ par leur valeur dans (2)' et (3)' et en tenant compte de φ_{12} déduite de l'équation (4)' on obtient cette fois h_{01} et g_{01} à l'ordre 1 ; par exemple :

$$h_{01}^{(1)} = \frac{1}{\Delta_{10}^-(v)} \left\{ \frac{i \mathcal{P}_{10+} E}{2\hbar} \Delta n_{10}^{(0)}(v) + \frac{i \mathcal{P}_{20+} E}{2\hbar} \varphi_{12}^*(v) \right\}$$

En fait nous nous intéressons ici seulement aux termes $h_{0i}^{(1)}$.

En effet le gain en intensité pour le faisceau sonde est donné par

$$G_-(\omega) = \frac{k}{E_+} \operatorname{Im} \int_{-\infty}^{+\infty} (h_{01}^* \mathcal{P}_{10} + h_{02}^* \mathcal{P}_{20}) dv$$

Cette expression est obtenue à partir de la relation

$$G_-(\omega) = k \operatorname{Im} \chi_- \quad \text{donnée par les équations de Maxwell en}$$

écrivant la polarisation macroscopique sous la forme

$$\mathcal{P} = \mathcal{P}_+ + \mathcal{P}_- \quad \text{avec} \quad \mathcal{P}_- = E_- \chi_- e^{i(\omega t - kz)} + \text{complexe conjugué.}$$

En remplaçant h_{01}^* et h_{02}^* par les valeurs trouvées à l'ordre 1 on déduit le gain en intensité pour le faisceau sonde en présence du champ saturant :

$$\begin{aligned} G_-(\omega) = -k \int_{-\infty}^{+\infty} & \left\{ \frac{\mathcal{P}_{10}^2}{2\pi} \Delta n_{10}^0(v) \frac{\gamma_{10}}{|\Delta_{10}^-|^2} - \frac{\mathcal{P}_{10}^4 E_+^2}{4\pi^3 \gamma_{10}'} \Delta n_{10}^0(v) \frac{\gamma_{10}^2}{|\Delta_{10}^-|^2 |\Delta_{10}^+|^2} \right. \\ & - \frac{\mathcal{P}_{10}^2 \mathcal{P}_{20}^2 E_+^2}{4\pi^3 \gamma_{10}''} \Delta n_{20}^0(v) \frac{\gamma_{10} \gamma_{20}}{|\Delta_{10}^-|^2 |\Delta_{20}^+|^2} \\ & \left. + \frac{\mathcal{P}_{10}^2 \mathcal{P}_{20}^2 E_+^2}{4\pi^3} \frac{1}{\omega_{12}^2 + \gamma_{12}^2} \left(\frac{\Delta n_{20}^0(v)}{\Delta_{10}^{-*}(v) \times \Delta_{20}^+(v)} + \frac{\Delta n_{10}^0(v)}{\Delta_{10}^{+*}(v) \Delta_{20}^{-*}(v)} \right) \right\} dv \\ & + \text{termes analogues obtenus par permutation des ordres 1 et 2} \end{aligned}$$

On s'intéresse seulement à la partie saturée du signal, c'est-à-dire à la quantité $G_-(\infty) - G_-(\omega)$, en supposant infinie la largeur Doppler.

Après intégration on trouve :

$$\begin{aligned} G_-(\infty) - G_-(\omega) = \frac{\sqrt{\pi}}{2\pi v_0} & \left\{ \mathcal{P}_{10}^2 \frac{\chi_{10}}{2} \Delta n_{10}^0 \frac{\gamma_{10}^2}{\gamma_{10}^2 + \Omega_{10}^2} + \mathcal{P}_{20}^2 \frac{\chi_{20}}{2} \Delta n_{20}^0 \frac{\gamma_{20}^2}{\gamma_{20}^2 + \Omega_{20}^2} \right. \\ & \left. + \frac{\mathcal{P}_{10}^2 \mathcal{P}_{20}^2 E_+^2}{2\pi^2 (\gamma_{10} + \gamma_{20})} \left(\frac{\Delta n_{10}^0}{\gamma_{10}''} + \frac{\Delta n_{20}^0}{\gamma_{20}''} \right) \frac{\left(\frac{\gamma_{10} + \gamma_{20}}{2} \right)^2}{\left(\frac{\gamma_{10} + \gamma_{20}}{2} \right)^2 + \left(\frac{\Omega_{10} + \Omega_{20}}{2} \right)^2} \right\} \end{aligned}$$

$$- \frac{\mathcal{P}_{10}^2 \mathcal{P}_{20}^2 E^2}{4\pi^2 (\omega_{12}^2 + \gamma_{12}^2)} \left[\Delta n_{10}^0 \frac{\Omega_{10} \omega_{12} - \gamma_{10} \gamma_{12}}{\Omega_{10}^2 + \gamma_{10}^2} - \Delta n_{20}^2 \frac{\Omega_{20} \omega_{12} + \gamma_{20} \gamma_{12}}{\Omega_{20}^2 + \gamma_{20}^2} \right]$$

En remplaçant $\frac{1}{\gamma_{10}''}$ et $\frac{1}{\gamma_{20}''}$ par leur valeur on reconnaît dans les trois premiers termes ceux déjà obtenus au Chapitre II lorsque l'on passe à la limite d'une saturation faible. On obtient ici un terme supplémentaire dû aux effets de cohérence. Ce terme est dissymétrique mais on peut remarquer que son effet est de déplacer le centre des résonances d'une quantité très faible : si les niveaux hyperfins sont bien séparés, le déplacement relatif est de l'ordre de $\frac{\gamma_{10}}{\omega_{10}}$ quantité très faible si les structures des deux termes sont elles-mêmes bien distinctes. Cependant l'effet peut ne pas être complètement négligeable lors de mesures très précises de positions (expériences à but métrologiques par exemple [15]). De plus l'intensité du terme dissymétrique, rapportée à celle de l'une des résonances normales, est faible si les niveaux hyperfins sont bien séparés ; le rapport est de l'ordre de

$$\frac{\gamma_0 \gamma_1}{2(\gamma_0 + \gamma_1) \omega_{12}} \quad \text{si} \quad \omega_{12} \gg \gamma_{12} .$$

Niveau supérieur commun

Les équations de départ sont cette fois :

$$\dot{\rho}_{00} = \lambda_0(\nu) - \gamma_0 \rho_{00} + 2\text{Im} \frac{\mathcal{P}_{01}}{\pi} E(z,t) \rho_{01} + 2\text{Im} \frac{\mathcal{P}_{02}}{\pi} E(z,t) \rho_{02}$$

$$\dot{\rho}_{11} = \lambda_1(\nu) - \gamma_1 \rho_{11} - 2\text{Im} \frac{\mathcal{P}_{01}}{\pi} E(z,t) \rho_{01} + \beta_{01} \rho_{00}$$

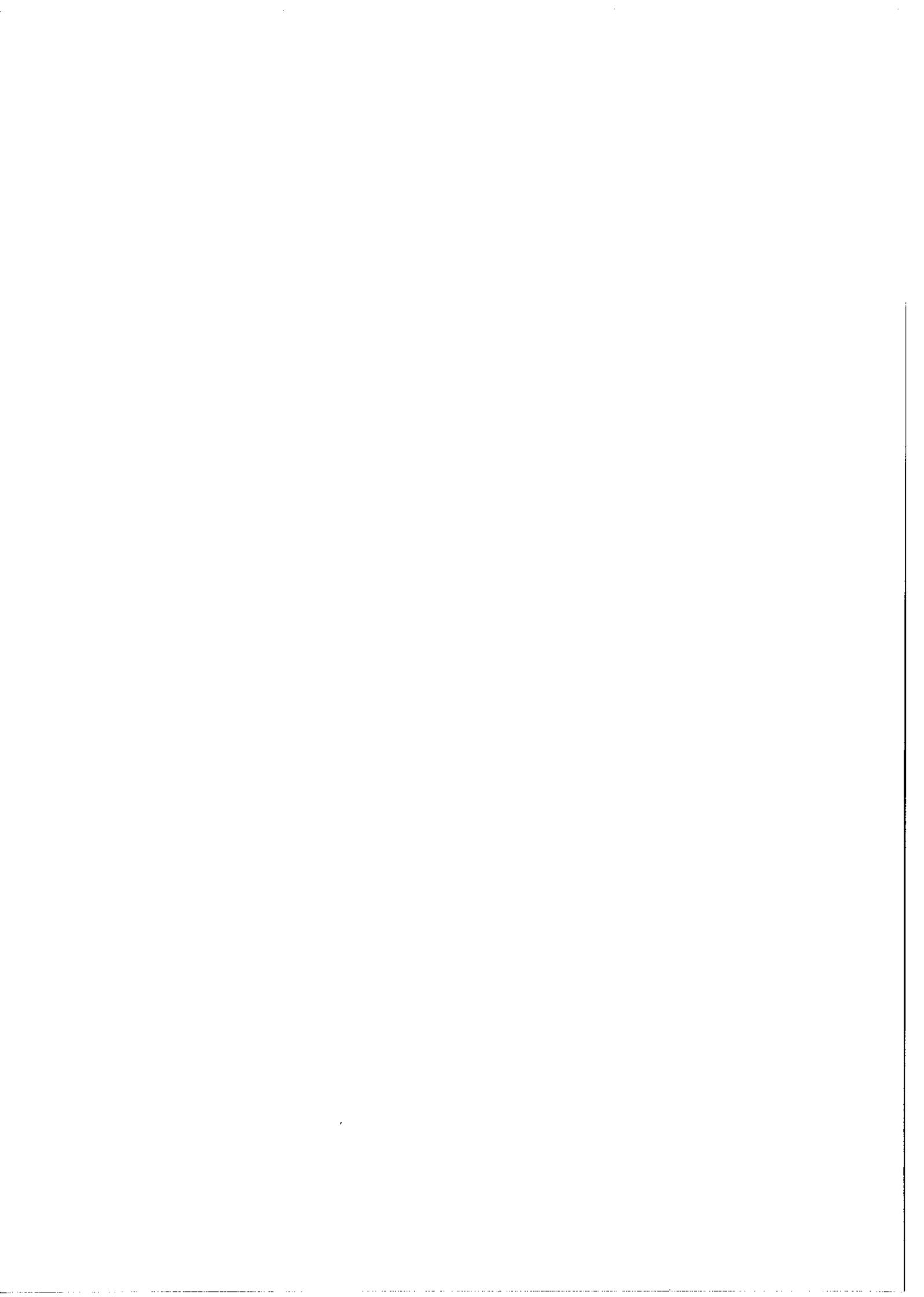
$$\dot{\rho}_{01} = -(\gamma_{01} + i \omega_{01}) \rho_{01} + i \frac{\mathcal{P}_{02}}{\pi} E^*(z,t) \rho_{12}^* - i \frac{\mathcal{P}_{01}}{\pi} E^*(z,t) (\rho_{00} - \rho_{11})$$

$$\dot{\rho}_{12} = -(\gamma_{12} + i \omega_{12}) \rho_{12} + i \frac{\mathcal{P}_{01}}{\hbar} E(z, t) \rho_{02} - i \frac{\mathcal{P}_{02}}{\hbar} E^*(z, t) \rho_{01}^*$$

et deux autres équations donnant $\dot{\rho}_{22}$ et $\dot{\rho}_{02}$ à partir de (2)" et (3)" par permutation des indices 1 et 2.

Le calcul s'effectue avec la même démarche que ci-dessus. Nous ne l'explicitons pas ici. Ce cas a été traité par Holt [63]. Les résultats sont analogues à ceux obtenus ci-dessus avec toutefois la possibilité d'une résonance parasite d'intensité négative comme nous l'avons déjà montré au Chapitre II.

Annexes de la 1ère partie



Classification
Physics Abstracts :
13.20

RAIES LASER INFRAROUGES DANS LES VAPEURS DE TERRES RARES ET D'ALCALINO-TERREUX

Ph. CAHUZAC

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

(Reçu le 9 novembre 1970)

Résumé. — Nous avons observé dans les vapeurs de terres rares (thulium, ytterbium, samarium, europium) et d'alcalino-terreux (baryum, strontium), 76 raies laser infrarouges. Les vapeurs étudiées sont excitées par des impulsions électriques brèves et intenses. A l'aide d'un interféromètre de Fabry-Perot et d'un dispositif de détection synchrone, nous avons mesuré quelques déplacements isotopiques dans la vapeur d'ytterbium. Enfin, nous avons mis au point un laser oscillant en mode unique pour plusieurs raies des vapeurs de baryum et de strontium.

Abstract. — We have observed in rare earth vapors (thulium, ytterbium, samarium, europium) and in alkaline earth vapors (barium, strontium), 76 infrared laser lines. The metallic vapors were excited with short and intense electrical pulses. With a Fabry-Perot interferometer and phase sensitive detection, we have measured several isotope shifts in ytterbium vapor. Finally we have achieved a single-mode laser operating with several lines of barium and strontium vapors.

I. Introduction. — L'excitation par des impulsions électriques brèves et intenses de vapeurs métalliques nous a permis d'obtenir de nombreuses raies laser infrarouges dans les vapeurs de quatre terres rares (thulium, ytterbium, samarium, europium) et de deux alcalino-terreux (baryum, strontium) (*). A notre connaissance, une seule de ces raies a déjà été observée par d'autres auteurs. Elles couvrent un domaine spectral s'étendant de 1μ à $6,5 \mu$. Nous avons identifié une grande partie d'entre elles. Les plus intenses sont issues de niveaux fortement connectés au niveau fondamental par transition dipolaire électrique (niveau résonnant), ou aboutissent à des niveaux métastables.

Ces laser constituent de nouvelles sources spectroscopiques infrarouges très intenses. A l'aide d'un étalon de Fabry-Perot extérieur à la cavité laser et d'un dispositif de détection synchrone approprié, nous avons effectué quelques mesures de déplacement isotopique. De plus, nous avons mis au point un laser oscillant sur un seul mode longitudinal pour plusieurs raies des deux alcalino-terreux étudiés.

II. Dispositif expérimental. — La méthode d'excitation que nous avons utilisée est maintenant classique pour la recherche des raies laser dans les vapeurs métalliques [1], [2], [3]. En principe, la simple décharge d'un condensateur dans le tube laser suffit à produire les impulsions nécessaires. Cependant, lors de l'ana-

lyse des raies à très haute résolution, un bon rapport signal/bruit est nécessaire. Cela exige d'une part une bonne stabilité de source, d'autre part une détection synchrone de la fréquence des impulsions. Ceci nous a conduit à envisager un montage plus complexe.

a) DISPOSITIF ÉLECTRONIQUE (Fig. 1). — Dans notre montage, la régularité du déclenchement des impulsions est assurée par un thyatron de puissance. Lui-même est commandé par une base de temps ajustable

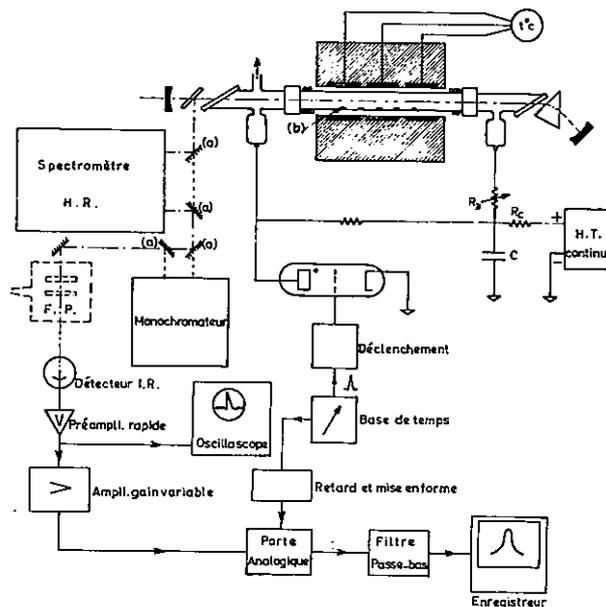


FIG. 1. — Ensemble du dispositif expérimental

(a) miroirs escamotables
(b) métal à étudier.

(*) La mise au point du dispositif expérimental et son application à l'étude des terres rares constitue la thèse de Doctorat de 3^e cycle soutenue par l'auteur le 8 Juillet 1969 à Orsay.

en fréquence de 1 Hz à 130 Hz environ. L'ensemble présente un temps de montée inférieur à 0,5 μ s et peut fournir des impulsions de 500 A maximum d'intensité de crête. Leur largeur est de l'ordre de 2 μ s.

La valeur du signal de cellule étant bien supérieure à la tension de bruit, on peut observer chaque impulsion sur un oscilloscope avec un bon rapport signal/bruit. Un tel mode d'observation suffit pour la recherche des raies laser, mais la situation n'est pas aussi favorable dans le cas d'un enregistrement. En effet, d'une impulsion à l'autre, l'intensité de crête peut varier beaucoup et de plus la durée du signal utile est faible devant celle qui sépare deux impulsions successives. Le signal enregistré (valeur moyenne du signal utile et du bruit) est constitué par du bruit pur pendant la majeure partie du temps et donc présente un rapport signal/bruit médiocre. On l'augmente notablement en ne détectant le signal électrique que pendant la durée du signal utile. Ceci est réalisé à l'aide d'une porte analogique. Commandée par la base de temps, elle multiplie le signal donné par la cellule par des créneaux périodiques synchrones des impulsions. Deux retards variables permettent d'ajuster leur largeur et leur position par rapport au signal utile.

b) DISPOSITIF THERMIQUE. — Les éléments à étudier, introduits dans le tube à décharge sous forme de grains métalliques purs à mieux que 99 %, sont solides à température ordinaire. Il est nécessaire de chauffer le tube laser afin d'obtenir une pression de vapeur métallique suffisante. A cet effet, nous avons utilisé des fours tubulaires, l'un électrique, l'autre à gaz. Tous deux sont régulés en température à mieux que ± 5 °C près. La géométrie du dispositif de chauffage (résistance électrique ou rampe de becs Meeker) est telle que la température reste relativement constante sur la majeure partie de la longueur du four (environ 75 cm).

Nous avons utilisé des tubes à décharge de 5 à 10 mm de diamètre interne. La partie centrale est en quartz ou en alumine. Les parties externes, froides, sont en pyrex. Au cours de l'expérience, nous introduisons un gaz porteur qui peut être indifféremment du néon, de l'argon, de l'hélium ou même de l'hydrogène. Son rôle est double : d'une part, il permet le passage de la décharge dans les parties froides du tube, d'autre part, il ralentit la diffusion de la vapeur métallique vers les fenêtres du laser.

c) DISPOSITIF OPTIQUE. DÉTECTEUR. — La cavité laser est du type confocal ; sa longueur est de 1,25 m. Les miroirs, revêtus d'une couche d'or totalement réfléchissante, présentent un bon pouvoir réflecteur dans l'infrarouge proche et moyen ($R \simeq 98$ %). Une faible partie de l'énergie lumineuse est prélevée à l'aide d'une lame placée dans la cavité, à 45° de son axe. Cette lame est en fluorine, ainsi que les fenêtres du tube à décharge placées à l'incidence de Brewster.

Un petit monochromateur à réseau permet de séparer les différentes raies laser dont nous mesurons

les longueurs d'onde grâce à un spectromètre à réseau à haute résolution du type Czerny-Turner (résolution à $\lambda = 2,5 \mu$: 150 000 environ). Pour l'analyse de la structure des raies laser à très haute résolution, nous disposons d'un étalon de Fabry-Perot plan, à épaisseur fixe. Le balayage en fréquence est effectué par variation de pression.

La détection du signal laser est assurée par des cellules photorésistives du type PbS ou Ge-Au, selon le domaine spectral étudié (1 μ -3 μ et 3 μ -8 μ respectivement).

III. Résultats. — *a) RECHERCHE ET IDENTIFICATION DES RAIES LASER.* — Pour tous les éléments étudiés, terres rares et alcalino-terreux, les conditions de fonctionnement sont assez voisines. Nous n'avons observé aucun effet laser au-dessous d'une pression de vapeur métallique de l'ordre de 10^{-4} torr. Au-dessus d'une pression de 0,5 torr, la consommation de métal augmente rapidement et entraîne une diminution notable de la durée de vie du tube. La pression du gaz porteur (0,5 torr à 3 torr) est en général nettement supérieure à celle de la vapeur métallique. Nous avons cherché à obtenir les raies laser avec plusieurs gaz porteurs afin de les distinguer des éventuelles raies laser de ces gaz. Dans la plupart des cas, l'intensité de crête des impulsions a été de 150 à 300 A.

Le tableau I résume les résultats obtenus dans l'étude des six éléments choisis.

Dans le thulium, les transitions observées sont groupées dans un domaine spectral assez étroit. Toutes mettent en jeu les niveaux profonds des configurations $4 f^{12} 6 p 6 s^2$ et $4 f^{13} 5 d 6 s$ pour les niveaux supérieurs, $4 f^{13} 6 s 6 p$ et $4 f^{12} 5 d 6 s^2$ pour les niveaux inférieurs [4]. Elles ont déjà été observées en émission spontanée par J. L. Vergès à l'aide du spectromètre SISAM [5]. Des sept niveaux inférieurs intéressés, six sont métastables.

Dans le cas de l'ytterbium, le domaine spectral couvert s'étend de 1 μ à 4,8 μ et les configurations mises en jeu sont nombreuses. Parmi les quatre raies observées en superradiance (Tabl. I), trois aboutissent à des niveaux métastables. Les deux raies du spectre II ont leur niveau supérieur fortement connecté par transition dipolaire électrique au niveau fondamental du spectre d'étincelles.

Dans la vapeur de samarium, nous n'avons pu identifier avec certitude qu'une seule transition ($\lambda = 26 998 \text{ \AA}$). Elle correspond à une raie observée en émission spontanée par C. Morillon. De même, la raie $\lambda = 20 483$ a été observée par cet auteur, mais sa classification n'est pas encore connue [6].

Le cas de l'euporium est plus favorable. Toutes les raies laser observées ont pu être identifiées. Comme dans le cas du thulium peu de configurations sont intéressées. Il s'agit des configurations $4 f^7 6 s 6 p$ et $4 f^7 6 s 5 d$. Beaucoup de niveaux sont communs à plusieurs raies. Toutes, sauf deux ($\lambda = 2,58 \mu$ et $\lambda = 2,72 \mu$) sont issues des trois niveaux du spectre I

TABLEAU I

Raies laser infrarouges observées.

(a) Le calcul des longueurs d'onde a été effectué à partir d'une liste de niveaux connus pour chaque élément, grâce à un programme mis au point au Laboratoire A. Cotton par J. Bauche et A. Carlier.

(b) D'une division à l'autre de cette échelle, l'intensité est multipliée par un facteur sept environ.

(c) Raie observée en super-radiance.

(d) Raie observée avec prisme sélecteur seulement.

(e) Raie oscillant également en décharge continue.

Éléments	$\lambda_{\text{air}}(\text{Å})$ observées (a)	$\lambda_{\text{air}}(\text{Å})$ calculées	Spectre	Energie des niveaux (cm^{-1})				Intensités relatives (b)	t °C min.	Remarques
				Supér.	J	Infér.	J			
Thulium										
				[Réf. 5]						
	13 040							2		
	13 100 ± 3	13 100	I	22 902	13/2	15 271	15/2	2		
	13 380 ± 0	13 380	I	22 743	13/2	15 271	15/2	4		
	14 340 ± 3	14 340	I	22 559	11/2	15 588	11/2	2		
	14 485 ± 3	14 485	I	26 368	11/2	19 466	13/2	3		
	14 996 ± 3	14 995	I	25 521	11/2	18 854	11/2	4		
	16 379 ± 3	16 379	I	24 957	11/2	18 854	11/2	4	800	
	16 750	16 754	I	24 957	11/2	18 990	11/2	4		
	17 320 ± 3	17 319	I	25 521	11/2	19 748	9/2	3		
	19 584 ± 3	19 584	I	22 559	11/2	17 455	13/2	5		
	19 730							1		
	19 942 ± 3	19 942	I	22 468	11/2	17 455	13/2	3		
	21 070							1		
	23 850	23 845	I	23 941	9/2	19 748	9/2	3		
Ytterbium										
				[Réf. 10-11]						
	10 322 ± 0,5	10 322	I	27 677	2	17 992	1	2		
	12 547 ± 1	12 548	I	27 677	2	19 710	2	2		
	14 280 ± 2	14 280	I	35 197	2	28 196	2	4		
	16 498 ± 2	16 498	II	30 392	3/2	24 332	5/2	5		(c)
	17 454 ± 2	17 454	I	38 422	1	32 694	1	3	420	(c)
	19 829 ± 2	19 830	I	24 752	2	19 710	2	4		(c)
	20 036 ± 2	20 036	I	35 197	2	30 207	3	3		
	21 181 ± 2	21 181	I	37 414	1	32 695	1	3		
	24 377 ± 2	24 377	II	27 061	1/2	22 960	3/2	5		(c)
	48 011 ± 3	48 009	I	25 271	3	23 188	2	3		(c)
Samarium										
				[Réf. 6]						
	19 120							2		
	20 482 ± 1	20 483						2		
	27 000 ± 1	26 998	I	32 568	7	28 865	6	5	800	
	29 663 ± 2							5		
	34 654 ± 2							3		
	35 361 ± 2							4		
	41 368 ± 2							3		
	48 656 ± 4							4		
Europium										
				[Réf. 12]						
	17 596 ± 1	17 596	I	21 761	9/2	16 079	11/2	5		
	25 809 ± 2	25 811	I	19 763	5/2	15 890	5/2	2		
	27 174 ± 2	27 174	I	19 631	9/2	15 952	7/2	3		
	43 220	43 202	I	21 761	9/2	19 447	11/2	4		
	46 937 ± 3	46 935	I	21 761	9/2	19 631	9/2	2	550	(d)
	50 646 ± 4	50 647	I	21 605	7/2	19 631	9/2	5		
	52 800	52 811	I	21 605	7/2	19 712	7/2	4		
	54 292	54 292	I	21 605	7/2	19 763	5/2	5		(d)
	57 707 ± 4	57 706	I	21 444	5/2	19 712	7/2	2		
	59 479 ± 4	59 479	I	21 444	5/2	19 763	5/2	2		
	60 579 ± 4	60 576	I	21 444	5/2	19 794	3/2	2		

TABLEAU I (suite)

Eléments	$\lambda_{\text{air}}(\text{\AA})$ observées (a)	$\lambda_{\text{air}}(\text{\AA})$ calculées	Spectre	Energie des niveaux (cm^{-1})				Intensités relatives (b)	t °C min.	Remarques
				Supér.	J	Infér.	J			
[Réf. 13]										
<i>Baryum</i>										
	*11 302,6 ± 0,5	11 303,0	I	18 060	1	9 215	2	5		
	*14 999 ± 1	15 000	I	18 060	1	11 395	2	5	(c)	
	*19 016 ± 1,5	19 017	I	30 237	2	24 980	3	2	(c)	
	*21 568 ± 1,5	21 568	I	28 554	1	23 919	2	2	(c)	
	23 252 ± 1,5	23 254	I	13 515	2	9 215	2	2	(c)	
	24 757 ± 1,5	24 758	I	28 230	0	24 192	1	1		
	25 514 ± 1,5	25 515	I	13 515	2	9 597	3	2		
	25 923 ± 1,5	25 924	II	50 011	3/2	46 154	5/2	3		
	29 059 ± 2	29 057	II	49 390	1/2	45 949	3/2	3	520	
	*29 227 ± 2	29 227	I	30 237	2	26 816	3	4		
	*39 576 ± 2	39 578	I	28 230	0	25 704	1	5		
	40 067 ± 3	40 069	I	25 704	1	23 209	0	1		
	*46 706 ± 3							5		
	*47 156 ± 3	47 156	I	39 894	2	37 774	1	2		
	47 168 ± 3	47 171	I	13 515	2	11 395	2	2		
	50 308 ± 3	50 309	I	35 892	1	33 905	1	1		
	*54 798							4		
	*55 636							5		
	*58 899 ± 4							2		
[Réf. 8-9-14]										
<i>Strontium</i>										
	10 326,6 ± 0,5	10 327,3	II	24 517	3/2	14 836	5/2	2		
	17 709 ± 1,5	17 709	I	20 150	2	14 504	1	3		
	19 759 ± 1,5	19 759	I	34 098	1	29 039	1	3		
	20 879 ± 1,5	20 879	I	33 827	2	29 039	1	4		
	27 064 ± 2	27 063	I	36 961	2	33 267	2	3		
	30 111 ± 2	30 110	I	18 219	2	14 898	2	1		
	30 662 ± 2	30 662	I	18 159	1	14 898	2	1		
	32 330 ± 2	32 327	I	36 961	2	33 868	1	3	450	
	34 926 ± 2	34 926	I	36 961	2	34 098	1	2		
	36 078 ± 2							2		
	37 420							2		
	40 268 ± 3							1		
	54 300							2		
	64 548 ± 4	64 549	I	21 699	1	20 150	2	5	(e) (c) (e)	

les plus fortement connectés au niveau fondamental par transition dipolaire électrique. Seule la raie $\lambda = 1,76 \mu$ aboutit à un niveau métastable. L'utilisation d'un prisme sélecteur de grand angle placé dans la cavité nous a permis de mettre en évidence des effets de cascades et de compétitions entre raies. En présence de ce prisme les intensités relatives sont notablement modifiées. En particulier les deux raies $\lambda = 2,58 \mu$ et $\lambda = 2,72 \mu$ n'oscillent pas. Ceci montre que leurs niveaux supérieurs sont essentiellement peuplés par cascade (Fig. 2). Enfin, l'intensité de $1,76 \mu$ est multipliée par un facteur dix environ.

Les transitions observées dans les vapeurs de baryum et de strontium font intervenir des configurations très diverses. Les deux raies les plus intéressantes sont $\lambda = 1,50 \mu$ pour le baryum et $\lambda = 6,45 \mu$ pour le strontium (Fig. 3). Elles mettent en jeu des niveaux homologues $sp(^1P_1) \rightarrow sd(^1D_2)$. Toutes deux ont été prévues par W. T. Walter et Coll. [7]. La raie

$\lambda = 1,50 \mu$ satisfait aux principaux critères énoncés par ces auteurs et caractérisant le mécanisme de l'émission laser à très haut gain, en impulsions. En particulier, le niveau supérieur est résonnant, le niveau inférieur est métastable. Cette situation favorise un peuplement rapide du niveau supérieur par collisions électroniques. On peut donc obtenir avec cette structure une inversion de population d'une durée très brève rapidement suivie d'une accumulation d'atomes sur le niveau métastable. Par suite, aucun effet laser ne peut avoir lieu en décharge continue. La situation est différente dans le cas de la raie $\lambda = 6,45 \mu$ du strontium : d'une part, le niveau $5s4d(^1D_2)$ a une énergie supérieure à celle des niveaux $5s5p(^3P_{0,1,2})$, d'autre part, pour le triplet $5s4d(^3D_{1,2,3})$ et, à un moindre titre, pour le triplet $5s5p(^3P_{0,1,2})$ on s'écarte du couplage (L, S). Le niveau $5s4d(^1D_2)$ n'est donc pas métastable. Ceci est confirmé par l'observation, en effet laser, de la raie $\lambda = 1,77 \mu$ correspondant à

la transition $5s\ 4d(^1D_2) \rightarrow 5s\ 5p(^3P_1)$ interdite en couplage (L, S) pur. Dans ces deux éléments quelques raies n'ont pu être encore identifiées. Il n'est pas impossible que certaines d'entre elles mettent en jeu les niveaux $^3F_{2,3,4}$ des configurations nd^2 ($n = 5$ pour le baryum, $n = 4$ pour le strontium) et dont les énergies ne sont pas encore connues.

(Tableau II) et de structure hyperfine pour une raie du thulium. Cependant, cette étude n'a pas été poursuivie, l'emploi d'isotopes séparés permettant seul d'obtenir des mesures précises et d'identifier avec certitude les différentes composantes des structures enregistrées.

TABLEAU II

Déplacements isotopiques observés dans l'ytterbium

λ_{air} (Å)	$\Delta\sigma$ (176-174) _{mK}	$\Delta\sigma$ (174-172) _{mK}
14 280		~ 15
16 498	$15,0 \pm 0,5$	$14,0 \pm 0,5$
17 454	$17,0 \pm 0,5$	$17,5 \pm 0,5$
19 829	Aucune structure observée	
20 036	~ 12	$12,5 \pm 0,5$
24 377	$11,5 \pm 0,5$	$12,0 \pm 0,5$
48 011	$- 72 \pm 1$	$- 75 \pm 1$

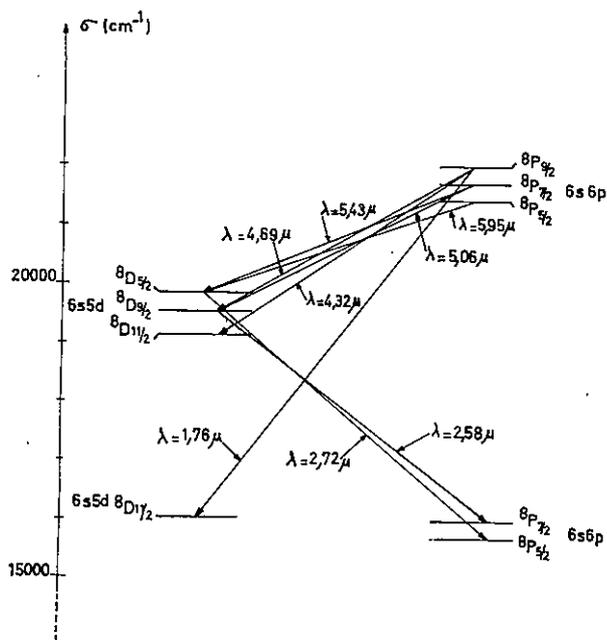


FIG. 2. — Schéma de quelques-unes des raies laser obtenues dans la vapeur d'euprémium montrant en particulier les effets de cascades sur les raies $\lambda = 2,58\ \mu$ et $\lambda = 2,72\ \mu$ et de compétition entre les raies $\lambda = 1,76\ \mu$ et $\lambda = 4,32\ \mu$.

L'appareil analyseur (Fabry-Perot) est placé à l'extérieur de la cavité. Celle-ci étant de grande longueur, plusieurs modes dominants sont présents dans la largeur Doppler et l'on enregistre approximativement l'enveloppe de ces modes élargie par la fonction instrumentale. Pour chaque raie étudiée, nous avons utilisé plusieurs intervalles entre ordres afin de lever les ambiguïtés dues à d'éventuels recouvrements d'ordres. La figure 4 donne un exemple d'enregistrement d'une raie de l'ytterbium. Les trois composantes correspondent très vraisemblablement aux trois isotopes les plus abondants dans le mélange naturel : Yb^{172} (22 %), Yb^{174} (32 %), Yb^{176} (13 %). Il est raisonnable de penser que les isotopes impairs, bien que relativement abondants Yb^{171} (14 %) et Yb^{173} (16 %) ne donnent lieu à aucun effet laser : par suite du trop grand nombre de composantes, le gain sur chacune d'elles est trop faible pour permettre l'oscillation.

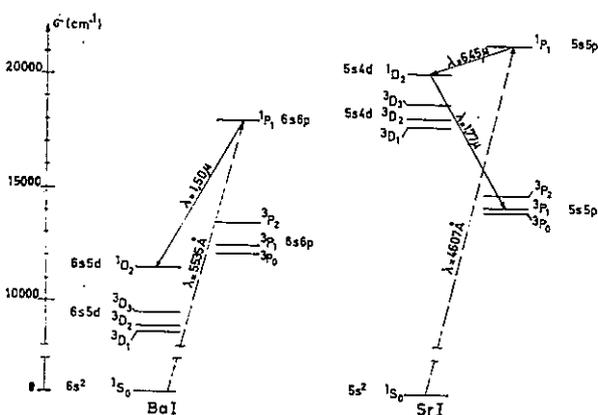


FIG. 3. — Schéma comparatif des niveaux les plus profonds du Ba I et du Sr I.

c) RÉALISATION D'UN LASER MONOMODE. — Les expériences précédentes nous ont montré l'existence de raies laser à gain très élevé, notamment dans les vapeurs de baryum ($\lambda = 1,50\ \mu$ gain $\approx 40\ \text{dB/m}$ à $760\ ^\circ\text{C}$) et de strontium ($\lambda = 6,45\ \mu$). Nous avons obtenu l'oscillation de ces raies avec une très courte longueur de milieu actif.

b) ANALYSE A TRÈS HAUTE RÉOLUTION DES RAIES LASER. — Malgré les diverses causes d'instabilité dans l'émission laser, il est possible d'effectuer une analyse à très haute résolution des raies obtenues dans les vapeurs précédentes. Nous avons effectué quelques mesures de déplacements isotopiques dans l'ytterbium

Pour une longueur de 20 cm de milieu actif (cavité de 40 cm), nous avons observé dans la vapeur de baryum onze des dix-neuf transitions précédentes. Ces transitions sont précédées d'un astérisque dans le tableau I. Avec une longueur de 4 cm de milieu actif (cavité de 22 cm), seule oscille la raie $\lambda = 1,50\ \mu$ et dans ce cas un seul mode dominant est présent dans la largeur Doppler. En déplaçant l'un des miroirs le long de son axe, nous avons « enregistré » les modes dominants successifs K-1, 0, 0 ; K, 0, 0 ; K + 1, 0, 0, etc... (Fig. 5). L'observation du « Lamb-dip » montre

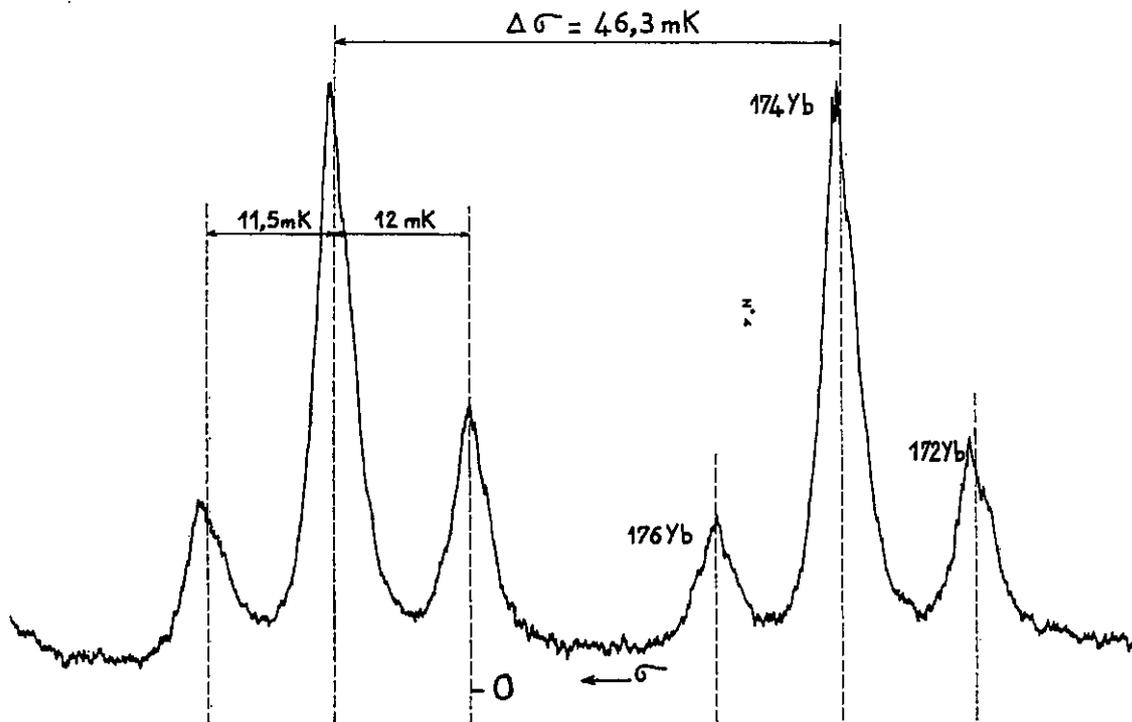
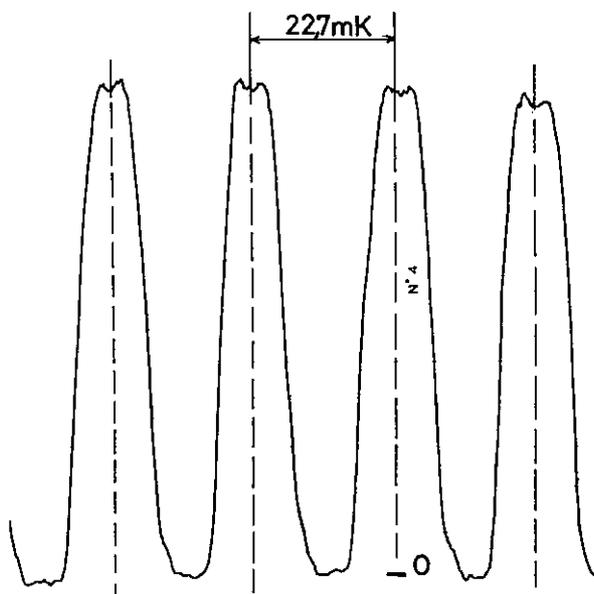
Yb II $\lambda = 2,4377 \mu$ 

FIG. 4. — Déplacement isotopique pour une raie de l'ytterbium.

Ba I $\lambda = 1,5000 \mu$ FIG. 5. — Exemple d'enregistrement obtenu sur la raie $\lambda = 1,50 \mu$ du Ba I à l'aide du laser monomode (longueur de la cavité : 22 cm).

la stabilité en fréquence de ces modes malgré les nombreuses causes d'instabilité dont les plus importantes sont la présence du four dans la cavité et le fonctionnement en impulsions.

Récemment, avec la même longueur de cavité (22 cm), nous avons obtenu l'oscillation en mode unique sur trois raies du strontium ($\lambda = 1,97 \mu$ et $\lambda = 2,09 \mu$ en impulsions ; $\lambda = 6,45 \mu$ en décharge continue).

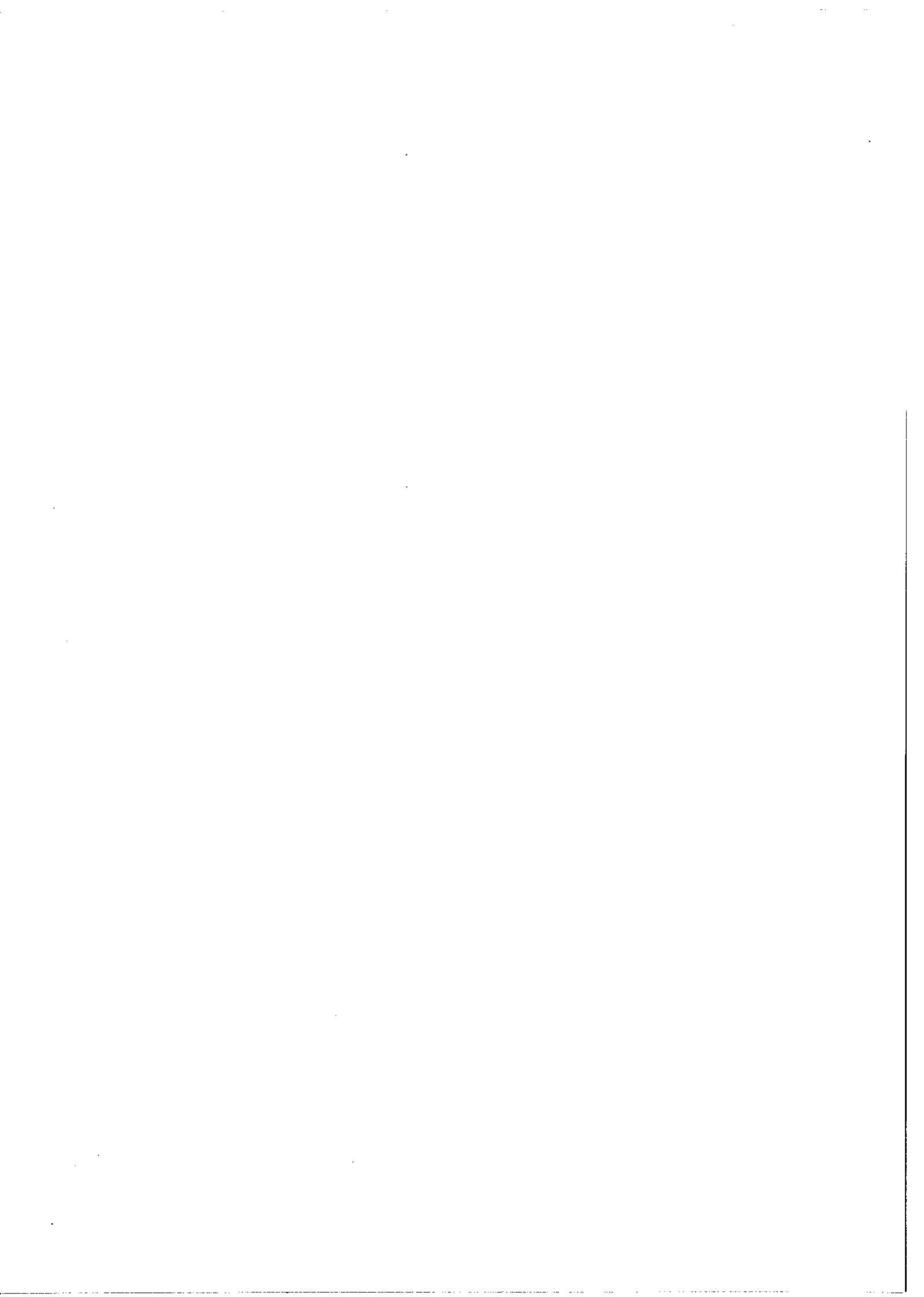
IV. Conclusion. — Le but initial de ce travail était d'obtenir des raies laser dans les vapeurs des terres rares afin d'aider à la classification de leur spectre.

Quoique assez élevé, le nombre de raies laser observées (43 dans les terres rares et 33 dans les alcalino-terreux) est insuffisant pour répondre au but recherché. Afin de résoudre le problème posé par les raies non encore identifiées, nous avons analysé les perturbations dans les intensités des raies visibles de l'émission spontanée ayant des niveaux communs avec les raies laser observées. Mais cette analyse menée soit par une étude photographique, soit par une étude temporelle des intensités n'a pas donné, pour le moment, de renseignements supplémentaires.

Cependant, ce travail montre qu'il est possible de mener à bien des études spectroscopiques à très haute résolution avec ce type de sources. De plus, avec le laser monomode, nous disposons d'une source infrarouge intense, très monochromatique et de longueur d'onde variable dans un petit domaine spectral. Nous comptons l'utiliser dans des expériences d'absorption.

Bibliographie

- [1] PILTCH (M.), WALTER (W. T.), SOLIMENE (N.), GOULD (G.), BENETT (W. R.), *J. App. Phys. Letters*, 1965, 7, 309.
- [2] FOWLES (G. R.), SILFVAST (W. T.), *J. App. Phys. Letters*, 1965, 6, 236.
- [3] WALTER (W. T.), PILTCH (M.), SOLIMENE (N.), GOULD (G.), *Bull. Am. Phys. Soc.*, 1966, 11, 113.
- [4] CAMUS (P.), *J. Physique*, 1966, 27, 717.
- [5] CAMUS (P.), GUELACHVILI (G.), VERGES (J.), *Spectrochimica acta*, 1969, 24B, 373.
- [6] BLAISE (J.), MORILLON (C.), SCHWEIGHOFER (M.-G.), VERGES (J.), *Spectrochimica Acta*, 1969, 24B, 405.
- [7] WALTER (W. T.), SOLIMENE (N.), PILTCH (M.), GOULD (G.), *I. E. E. E. J. Quant. Electronics*, 1966, QE 2, 474.
- [8] DEECH (J. S.), SANDERS (J. H.), *I. E. E. E., J. Quant. Electronics*, 1968, QE 4, 474.
- [9] SOROKIN (P. P.), LANKARD (J. R.), *Phys. Rev.*, 1969, 186, 342.
- [10] MEGGERS (W. F.), 1966, non publié.
- [11] MEGGERS (W. F.), *Physics and Chemistry*, 1967, 71, 396.
- [12] RUSSEL (H. N.), KING (A. S.), *Astrophys. J.*, 1939, 90, 155.
- [13] MOORE (C. E.), *N. B. S. Circular*, 1958, 3, 467.
- [14] MOORE (C. E.), *N. B. S. Circular*, 1952, 2, 467.
-



New Infrared Laser Lines in Mg Vapor

P. CAHUZAC

Abstract—Seven new infrared laser lines have been observed in magnesium vapor. Six are identified, two as transitions in Mg II and four as transitions in Mg I.

New pulsed and CW laser oscillations in Mg vapor ranging from 2.4 to 4.4 μ are reported here. The experimental setup is similar to that previously used in our rare earth and alkaline-earth studies [1].

In order to reduce a possible action of the metal on the walls of the tube, the heated central part was made of pure alumina. Natural metallic magnesium was inserted in the discharge tube (10-mm ID), filled with a buffer gas (He, Ne, or Ar). The laser cavity was a quasi-confocal resonator. The laserlight was detected with a cooled Ge-Au cell. The wavelengths were accurately measured with a high-resolution grating spectrometer (Jobin-Yvon spectrometer, $F=1.50$ m).

The infrared laser spectrum was investigated using either pulsed or CW excitation. With a pulsed excitation the laser oscillation starts at 450°C with peak current of 150 A. The energy-level diagram of the first and second spectra of Mg [2], [3] show that the criteria given by Walter *et al.* [4] are not satisfied. This explains why only two weak laser lines have been observed in these experimental conditions. With a CW excitation, five different laser lines have been observed. The laser effect starts at 450°C with current intensity between 40 and 100 mA. In every case the laser oscillation does not depend on the nature of the buffer gas.

The wavelengths and the classifications of the observed laser lines are given in Table I. Six lines are identified. The two lines obtained in pulsed discharge belong to the singly ionized spectrum and the four other classified lines, obtained in CW dis-

Manuscript received February 7, 1972.
 The author is with the Laboratoire Aimé Cotton, Centre National de la Recherche Scientifique II, Orsay, France.

TABLE I
 NEWLY OBSERVED LASER LINES IN Mg VAPOR

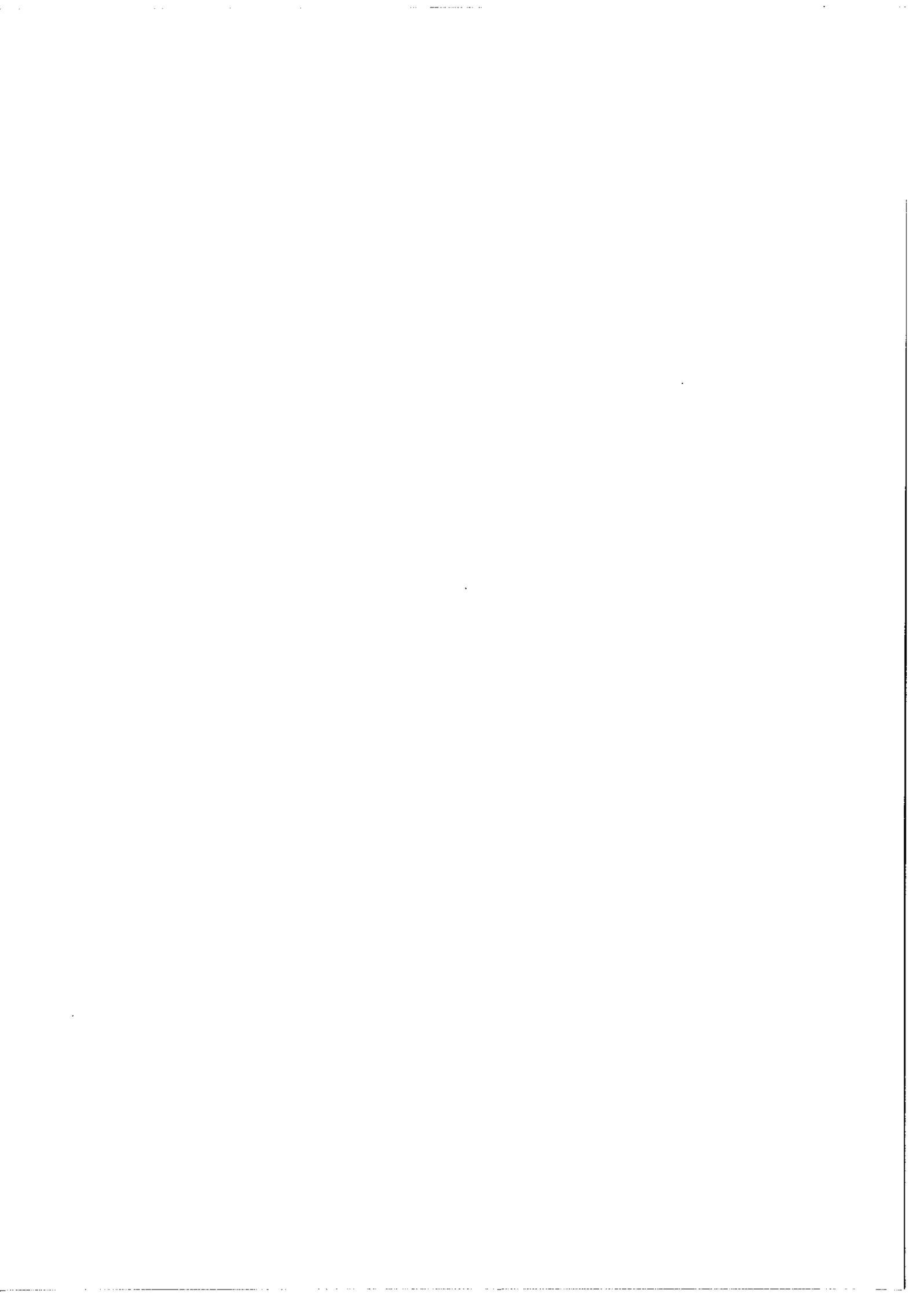
λ air (Å) (measured)	λ air (Å) (calculated)	Excita- tion	Classification [2]-[3]	Spec- trum
24 041.6 \pm 3	24 041.5	pulsed	$5p^2P_{3/2} \rightarrow 4d^2D_{5/2}$	II
24 125.2 \pm 3	24 124.5	pulsed	$5p^2P_{1/2} \rightarrow 4d^2D_{3/2}$	II
36 779.3 \pm 1	36 779.4	CW	$5d^2D \rightarrow 5p^3P_1$	I
36 815.2 \pm 1	36 815.4	CW	$5d^2D \rightarrow 5p^3P_2$	I
38 657.3 \pm 1		CW		
42 002.4 \pm 1	42 001.8	CW	$5p^3P_2 \rightarrow 5s^3S_1$	I
43 626.3 \pm 1	43 626.9	CW	$5d^2D \rightarrow 4f^2F$	I

charge only, belong to the neutral spectrum of Mg. For three of them, the complete identification of the levels is difficult. Both in the $5d^2D$ and $4f^2F$ terms, the different J levels lie very close to one another, and we are not able to determine which levels are involved in the laser oscillation.

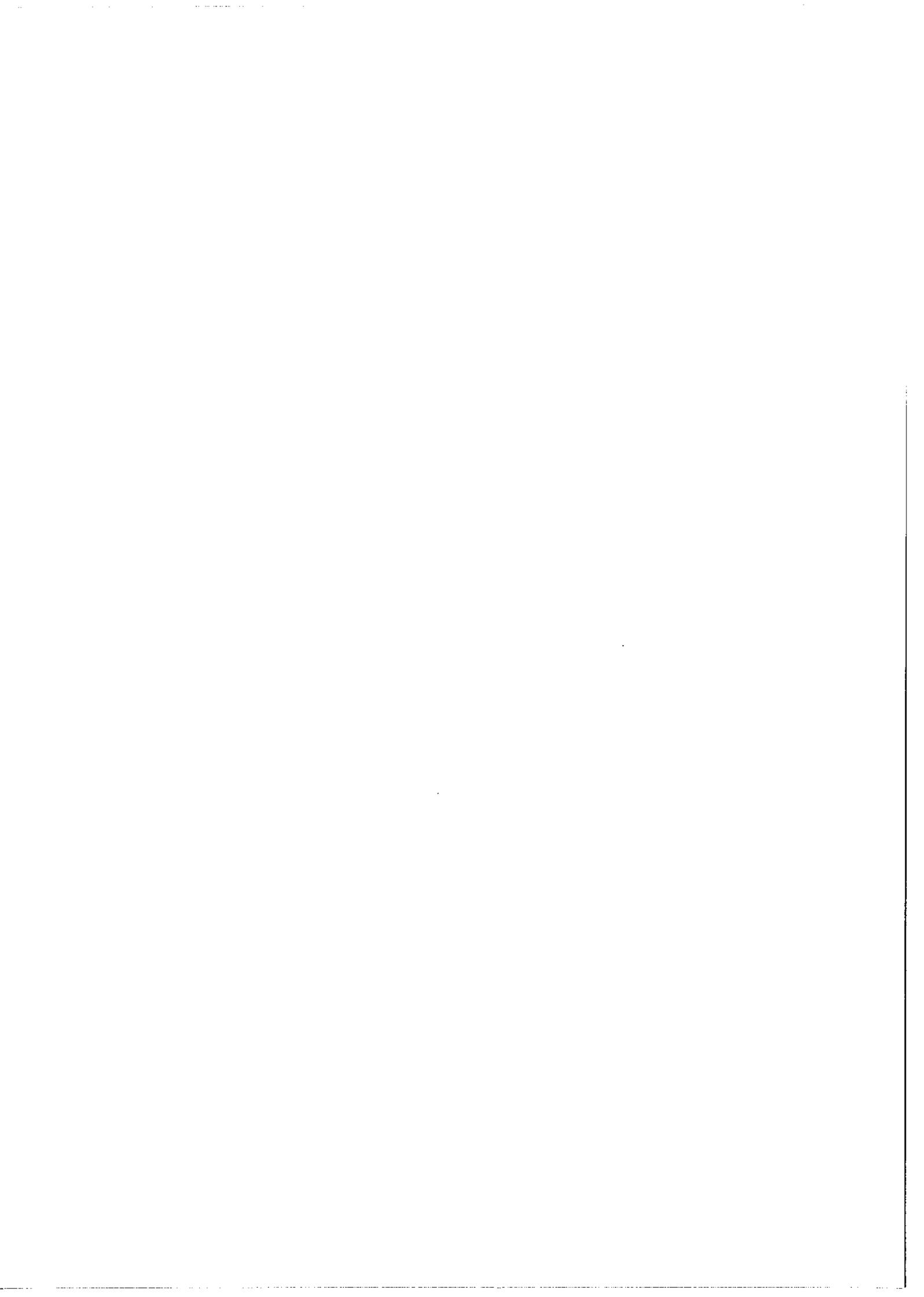
For the 4.2- μ laser line, the main laser excitation process is a cascade process involving the 3.68- μ laser line. This effect was proved by putting a selective prism in the laser cavity: the 4.2- μ laser line does not oscillate under these conditions. For the 3.67-, 3.68-, and 4.36- μ laser lines we can conclude that the excitation process is probably due to electronic collision mechanisms. This is suggested by the fact that the involved levels are relatively low and that the laser effect is quite independent on the nature of the buffer gas. This is not the case for the near infrared laser lines of Mg II recently observed by Hodges [5], for which Penning collisions between metastable He atoms and neutral Mg atoms are the main laser excitation process.

REFERENCES

- [1] P. Cahuzac, "Raies laser infrarouges dans les vapeurs de terres rares et d'alkalino-terreux," *J. Phys.*, vol. 32, pp. 499-505, 1971.
- [2] G. Risberg, "The spectrum of atomic magnesium, Mg I," *Ark. Fys.*, vol. 28, no. 32, pp. 381-395, 1965.
- [3] P. Risberg, "The spectrum of singly-ionized magnesium, Mg II," *Ark. Fys.*, vol. 9, no. 31, pp. 483-494, 1955.
- [4] W. T. Walter, N. Solimene, M. Piltch, and G. Gould, "Efficient pulsed gas discharge lasers," *IEEE J. Quantum Electron.*, vol. QE-2, pp. 474-479, Sept. 1966.
- [5] D. T. Hodges, "CW Laser oscillation in singly ionized magnesium," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 18, pp. 454-456, May 15, 1971.



Annexe de la 2ème partie



MESURE DE LA STRUCTURE HYPERFINE D'UNE TRANSITION INFRAROUGE DU BARYUM I EN ABSORPTION SATURÉE

PH. CAHUZAC

*Laboratoire Aimé Cotton, C.N.R.S. II, Bâtiment 505,
91405 Orsay, France*

Reçu le 26 janvier 1973

Synopsis

The hyperfine structure of the 1.5 μm transition in ^{137}Ba (spectrum I) has been studied by use of saturated absorption techniques. With these techniques the observed components are free from Doppler effect and one can therefore resolve very close structures. In our experiment the light source is a pulsed monomode barium laser, tunable over 540 MHz. The hyperfine constants for the $6s5d$ (1D_2) metastable level, so far unknown, are obtained: $A = -99 \pm 6$ MHz, $B = 21 \pm 9$ MHz. These results are in good agreement with theoretical calculations. An approximate value for the 137-138 isotope shift is simultaneously obtained for this infrared transition.

1. *Introduction.* La structure hyperfine d'une transition infrarouge de l'isotope 137 du baryum a été étudiée par la méthode d'absorption saturée. Cette structure, masquée par l'effet Doppler n'avait pu être mesurée jusqu'alors. Nous avons obtenu une valeur approchée des constantes de structure hyperfine et du déplacement isotopique 137-138.

Les propriétés de la saturation de l'absorption sont maintenant bien connues^{1,2}. Elles ont été largement utilisées pour la stabilisation en fréquence des laser à gaz³) et plus récemment la méthode a donné de remarquables résultats en spectroscopie moléculaire^{4,5,6}). Elle a cependant été peu utilisée en spectroscopie atomique. Dans ce domaine en effet les largeurs homogènes ne sont pas négligeables devant la largeur Doppler. Néanmoins pour le visible et le proche infrarouge, régions où l'élargissement Doppler est important la méthode présente un intérêt certain. A notre connaissance, seuls Hansch, Shahin et Schawlow ont appliqué les propriétés de l'absorption saturée à l'étude de transitions atomiques^{7,8}).

Pour notre part, nous nous sommes intéressés à la transition du baryum I $\lambda = 1,5 \mu$: $6s6p$ (1P_1) \rightarrow $6s5d$ (1D_2). Le choix de cette transition nous a été suggéré en recherchant *a priori* une raie pouvant donner lieu, selon les conditions d'excitation, soit à l'oscillation laser soit à l'absorption. Des études antérieures relatives à l'oscillation laser dans les vapeurs métalliques avaient mis en évidence

l'existence de raies laser intenses en impulsions en particulier dans le baryum et le strontium⁹). Ces raies aboutissent à des niveaux métastables. Elles sont susceptibles de donner une forte absorption en décharge continue. Nous nous sommes donc intéressés à ce type de transition et plus particulièrement à la plus intense parmi celles obtenues avec la vapeur de baryum ($\lambda = 1.5 \mu$). En effet pour cette raie la structure hyperfine (isotopes impairs) du niveau supérieur est très faible¹⁰), et celle du niveau inférieur, inconnue, est due seulement à un couplage (L,S) imparfait. On peut s'attendre à une structure d'étendue comparable à la largeur Doppler.

Dans cet article, nous présentons le montage expérimental mis au point pour cette étude, l'analyse du phénomène proprement dit de l'absorption saturée effectuée avec du baryum naturel puis l'étude de la structure hyperfine de l'isotope 137.

2. *Montage expérimental.* 2.1. Description. Une vue d'ensemble du dispositif est donnée par la fig. 1. Un laser source monomode, étalonné en fréquence

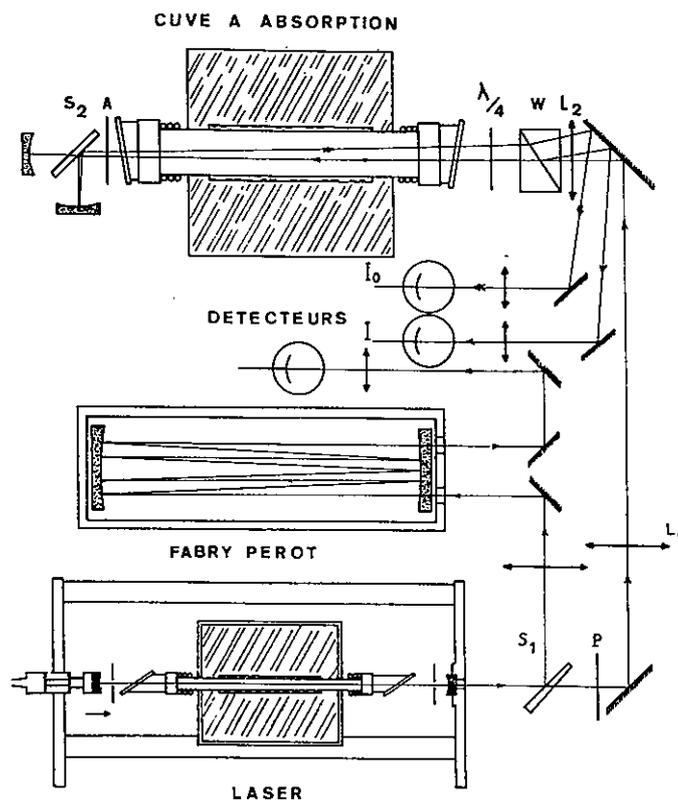


Fig. 1. Vue d'ensemble du dispositif expérimental.

par un Fabry-Perot de grande épaisseur optique et une cuve à absorption en constituent les principaux éléments.

2.1.1. Le laser source. Afin d'obtenir une pression de vapeur métallique suffisante, il est nécessaire de chauffer le baryum à une température supérieure à 600°C . A cet effet, le tube laser est placé dans un four électrique réglé. La partie centrale chaude du tube est en alumine, corps présentant une bonne résistance chimique au baryum. Les extrémités froides sont en pyrex. Une liaison étanche entre ces trois parties est assurée par des joints toriques refroidis. Une bonne stabilité thermique est obtenue en munissant le four de doubles parois refroidies par circulation d'eau et en supportant les miroirs à l'aide d'une monture en invar.

La cavité est constituée de deux miroirs sphériques à couches multidiélectriques de 30 cm de rayon de courbure et distants de 17 cm. L'un d'eux (coefficient de réflexion à $1,5\ \mu$: 99,9%) se déplace le long de l'axe de la cavité ce qui assure un balayage continu en fréquence. L'énergie lumineuse est extraite à travers l'autre miroir (coefficient de réflexion à $1,5\ \mu$: 83%).

Le laser est excité par des impulsions de courant (intensité de crête 25 A, durée $1\ \mu\text{s}$). Ceci est imposé par la nature de la transition étudiée dont le niveau supérieur est résonant et dont le niveau inférieur est complètement métastable¹¹⁾

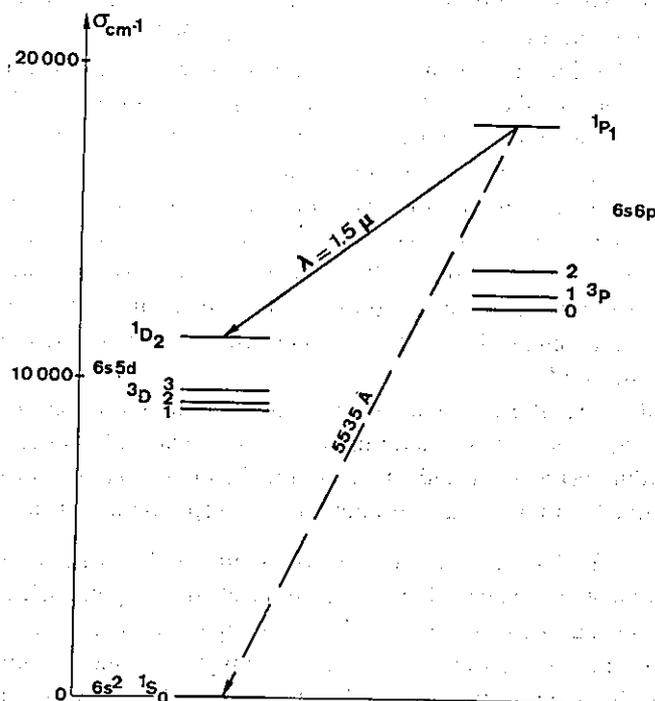


Fig. 2. Schéma des niveaux les plus profonds du baryum I.

(fig. 2). Ce type de transition présente en général un gain très élevé. A l'aide d'un tube amplificateur placé dans des conditions de fonctionnement très voisines de celles du laser nous avons mesuré un gain en impulsion de 4 dB/cm.

Nous obtenons l'oscillation en mode unique sur près de 18 mK (540 MHz) soit environ une fois et demie la largeur Doppler à la température de fonctionnement du laser ($\Delta\sigma_D \simeq 12$ mK à 630°C). Notons que le faible effet Zeeman dû au champ magnétique créé par l'enroulement chauffant du four contribue à élargir la plage d'oscillation du laser tout en déformant peu le profil enregistré.

L'examen à l'oscilloscope des impulsions laser détectées par les cellules infrarouges montre que les fluctuations d'intensité d'une impulsion à l'autre ne dépassent pas 5%.

2.1.2. Le Fabry-Pérot. Pour un laser fonctionnant sur un seul mode dominant la fréquence émise n'est pas égale en général à celle imposée par la cavité passive¹²). Toute mesure précise de position des composantes hyperfines suppose que l'on dispose d'un étalonnage en fréquence. Nous avons adopté la solution du Fabry-Pérot sphérique utilisé en passages multiples^{13,14}). Si l'on n'est pas très exigeant sur la finesse instrumentale cette configuration offre l'avantage de fournir des intervalles entre ordres très petits pour une distance raisonnable entre miroirs. De plus, le Fabry-Pérot est utilisé hors de l'axe; il n'y a pas de lumière de retour vers le laser. Pour une distance fixe entre miroirs de 902 mm et des rayons de courbure de 11,82 m l'intervalle entre ordres est de 0,692 mK (huit doubles passages). La fig. 4 montre l'aspect du profil laser après passage dans l'interféromètre. La dissymétrie observée dans l'enveloppe de ce profil est due essentiellement à l'utilisation du mélange isotopique naturel.

La durée très brève de l'oscillation laser ainsi que les instabilités en fréquences contribuent à donner une certaine «largeur spectrale» au mode laser. Le contraste des franges enregistrées s'en trouve affecté. Dans des expériences préliminaires l'étude des franges nous a permis d'optimiser les principaux paramètres électriques et optiques intervenant dans le fonctionnement du laser afin de rendre minimum la largeur du mode.

De cette étude, il résulte que dans les conditions habituelles il est raisonnable d'attribuer au mode une largeur maximum de 0,2 mK. Dans l'hypothèse où après un maximum d'intensité très rapidement atteint, l'émission laser décroît suivant une loi exponentielle la largeur à «mi-hauteur» correspondante est de 26 ns.

2.1.3. La cuve à absorption. Il s'agit d'un tube à décharge dont la partie centrale en alumine est placée dans un four électrique régulé. L'enroulement chauffant est double afin d'éviter un effet Zeeman apparaissant dans ce cas comme un effet parasite. La cuve est excitée soit en décharge continue soit en créneaux (cf. 2.1.4.b). Sa longueur active est de 10 cm environ. Pour un courant de décharge de 40 mA à 620°C (pression de baryum $\approx 10^{-3}$ torr) on observe une absorption de l'ordre de 10% du signal incident pour une seule traversée de la cuve.

2.1.4. Montage optique - Détection des signaux. Deux critères nous ont guidé dans le choix de cet ensemble: ne conserver à l'enregistrement que le signal de saturation et diminuer le plus possible l'influence des fluctuations d'intensité de source.

a. Dispositif optique (fig. 1). Une faible partie de l'énergie laser est prélevée à l'aide de la lame prismatique S_1 et sert à l'étalonnage en fréquence du signal. La majeure partie de l'énergie émise est concentrée au mieux dans la cuve grâce aux lentilles L_1 , L_2 . Le diamètre $2W_0$ du faisceau saturant dans la région active de la cuve est d'environ 0,3 mm. Après la traversée du tube la séparatrice S_2 fournit deux faisceaux. L'un (faisceau sonde d'intensité I) revient sur lui-même et subit l'absorption dans la région saturée, l'autre (faisceau de référence d'intensité I_0) revient dans une direction légèrement différente et subit l'absorption dans la région non saturée par le faisceau incident I_s . Cette disposition est pratiquement imposée par la faible valeur de W_0 nécessaire pour obtenir une densité d'énergie importante dans la cuve. Elle permet au faisceau de référence de se propager dans une région très voisine de celle du faisceau sonde (ceci est important, le milieu absorbeur étant ici inhomogène), mais elle rend impossible un retour du faisceau sonde dans une direction autre que celle du laser, dont le fonctionnement est perturbé si on ne prend pas de précautions. De plus il est évident qu'un tel montage est très sensible à tout dérèglement optique même faible.

L'ensemble polariseur P, prisme de Wollaston (W) et lame quart d'onde sert d'isolateur optique et permet de prélever la quasi-totalité de la lumière de retour. En fait malgré ce dispositif une faible fraction du faisceau saturant retourne vers la source et perturbe son fonctionnement. Pour l'éviter, nous avons adopté la solution suivante. Nous avons placé la cuve à une distance de la source telle que le temps mis par la lumière pour parcourir le trajet laser-cuve-laser est supérieur à la durée de l'impulsion laser. La durée très brève de celle-ci conduit à des distances raisonnables entre les différents supports de miroirs. (Une distance de 6 m entre le laser et la cuve est en fait suffisante.)

Enfin l'atténuateur A permet de travailler avec des faisceaux de retour de faible intensité (4% environ du faisceau saturant I_s) ce qui augmente l'amplitude relative au pic de saturation.

b. Dispositif électronique (fig. 3). Une base de temps unique synchronise l'excitation des tubes et la détection des signaux.

L'alimentation en impulsions du laser est obtenue par décharge de capacité. La régularité du déclenchement est assurée par un thyatron. Dans nos expériences préliminaires la cuve était excitée en décharge continue. Nous avons ensuite préféré une excitation en créneaux dont la durée (1 ms) est suffisante pour permettre au niveau métastable 1D_2 de se peupler correctement. Les créneaux sont synchrones des impulsions laser mais déphasés: on peut opérer en post-décharge. Si le temps qui sépare l'extinction de la cuve de l'émission laser n'est pas trop

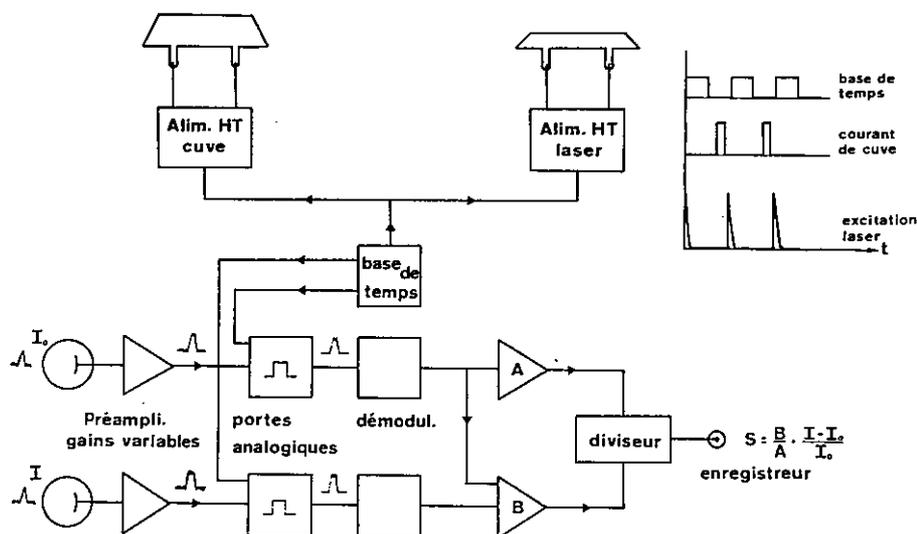


Fig. 3. Schéma d'ensemble du dispositif électronique.

grand le métastable reste bien peuplé et le procédé permet de s'affranchir de la lumière parasite provenant de la cuve.

Les expériences d'absorption non saturée faites en post-décharge nous ont permis de préciser le temps de relaxation du 1D_2 . Celui-ci varie selon les conditions de pression dans le tube à décharge (pression de baryum et pression de gaz porteur, en général du néon). Nous avons observé des temps de désexcitation allant de 30 à 60 μ s.

Les signaux correspondant aux deux faisceaux de retour I et I_0 sont détectés par des cellules infrarouges rapides (photodiodes au germanium ayant leur maximum de détectivité vers 1,55 μ et un temps de réponse inférieur à 1 μ s).

La durée des impulsions électriques est brève devant leur période ($\approx 10^{-6}$ s et $\approx 10^{-2}$ s, respectivement). Un enregistrement effectué sans précaution particulière présenterait un rapport signal/bruit très médiocre. Afin de l'améliorer nous utilisons une détection à portes analogiques. Elle permet de ne conserver que la partie utile du signal, celle correspondant à l'impulsion. Cette détection synchrone, adaptée à la nature des signaux est suivie d'un filtre réalisant une moyenne sur un grand nombre d'impulsions (démodulation), ce qui augmente encore le rapport signal/bruit. On obtient des signaux proportionnels à I et I_0 . Un amplificateur différentiel suivi d'un diviseur donne finalement un signal S proportionnel à $(I - I_0)/I_0$. Nous verrons que S , qui dépend encore de I_s , représente pratiquement le signal de saturation seul (cf. 3.1).

L'ensemble de ce dispositif présente l'inconvénient de mettre en jeu pour le traitement de I et I_0 deux voies distinctes. Elles ne peuvent être rigoureusement

identiques tant du point de vue optique que du point de vue électronique. D'une façon très générale il en résulte des fluctuations non corrélées dans les signaux délivrés par les cellules. Elles se traduisent par des fluctuations basse fréquence sur S . Elles sont très supérieures au bruit propre des récepteurs et des différents composants électroniques ainsi qu'aux fluctuations dues aux instabilités de source. Il en résulte pour S un rapport signal/bruit de l'ordre de 20 à 30 dans nos conditions habituelles de travail.

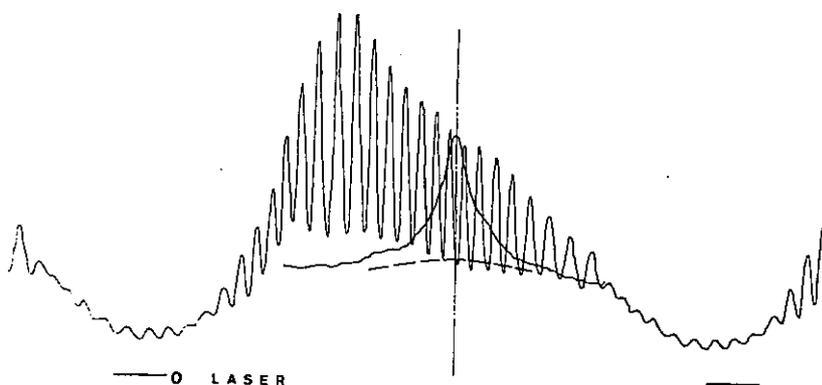


Fig. 4. Pic de résonance obtenu en baryum naturel. L'enregistrement montre le profil laser après passage dans le Fabry-Pérot sphérique. La distance entre franges est de 0.692 mK.

2.2. Résultats obtenus en baryum naturel. Dans un premier temps nous avons cherché à obtenir le signal d'absorption saturée en plaçant dans la cuve du baryum naturel. La fig. 4 montre un exemple typique d'enregistrement obtenu dans ce cas. Comme nous le verrons au paragraphe suivant la largeur du pic de

TABLEAU I

Composition isotopique du baryum naturel		
Isotope	Abond. (%)	I
130	0.1	
132	0.1	
134	2.4	
136	7.8	
138	71.6	
135	6.6	$\frac{3}{2}$
137	11.3	$\frac{3}{2}$

résonance est essentiellement due à la largeur naturelle de la raie augmentée des effets de pression, de «largeur» du mode laser et de l'élargissement par saturation. La dissymétrie observée dans le profil peut être attribuée à la variation de l'intensité laser au cours du balayage et à l'utilisation du baryum naturel. Celui-ci contient essentiellement du baryum 138 (cf. le tableau I) mais la présence de 7,8% de baryum 136 ne peut être négligée a priori. L'influence des isotopes impairs est négligeable à cause du grand nombre de composantes. Quelques enregistrements effectués avec du baryum 138 enrichi à mieux que 99% montrent que les effets du mélange isotopique sur le profil enregistré sont masqués par les autres causes de déformation et d'élargissement.

3. *Forme et intensité théoriques du signal.* 3.1. Cas d'une raie sans structure. Dans tout ce qui suit nous supposons que l'effet Doppler donne un élargissement très supérieur à la largeur homogène, que le faisceau sonde est d'intensité très faible devant celle du faisceau saturant et que l'absorption n'est pas trop grande. Avec ces hypothèses le coefficient d'absorption du faisceau sonde en présence du faisceau saturant est, en première approximation :

$$\alpha(\Omega) = \alpha_0(\Omega) [1 - b(\Omega) \mathcal{L}(\Omega, \bar{\Gamma})]. \quad (1)$$

Nous utilisons ici les notations de Baklanov et Chebotaev¹⁾. Ω représente l'écart entre la fréquence ω du laser et celle de la raie d'absorption ω_0 .

$$\alpha_0(\Omega) = \alpha_0 \exp - (\Omega/\omega_d)^2,$$

est le coefficient d'absorption en champ faible.

On définit le paramètre de saturation χ par: $\chi = I_s \mu^2 / \hbar^2 \gamma \Gamma$, μ est l'élément de matrice du moment dipolaire de la transition; γ est défini par: $2/\gamma = \tau_1 + \tau_2$ somme des durées de vie des niveaux supérieurs et inférieurs respectivement. Γ est la demi-largeur homogène de la transition.

Alors

$$\bar{\Gamma} = \frac{\Gamma}{2} [1 + (1 + \chi)^{\frac{1}{2}}], \quad b = \frac{\chi}{1 + \chi + (1 + \chi)^{\frac{1}{2}}}$$

et

$$\mathcal{L}(\Omega, \bar{\Gamma}) = \frac{\bar{\Gamma}^2}{\Omega^2 + \bar{\Gamma}^2}.$$

Appliquée à notre dispositif expérimental particulier cette relation permet de calculer la forme du signal enregistré lorsqu'on explore en fréquence le profil d'absorption.

Dans l'hypothèse où l'épaisseur optique $\alpha_0 L$ est faible (L longueur active de la cuve) on trouve:

$$S(\Omega) \propto (I - I_0)/I_0 \simeq \alpha_0(\Omega) L b(\Omega) \mathcal{L}(\Omega, \bar{\Gamma}) \\ \times [1 + \alpha_0(\Omega) L b(\Omega) \mathcal{L}(\Omega, \bar{\Gamma})]. \quad (2)$$

La mesure expérimentale de l'absorption du faisceau de référence effectuée successivement avec un faisceau incident I_s saturant puis faible permet de connaître ce paramètre de saturation. Dans nos conditions habituelles de travail on trouve:

$$\alpha_0 L \approx 0.18, \quad \chi \approx 2, \quad b \approx 0.4.$$

L'intensité laser n'étant pas constante au cours du balayage, χ et b dépendent de Ω . Les valeurs numériques précédentes correspondent à la fréquence pour laquelle I_s est maximum.

Bien que $\alpha_0 L$ ne soit pas très faible devant l'unité, nous négligerons le terme correctif de la relation (2). En effet ce terme déjà faible est atténué par le produit $b \cdot \mathcal{L}$ nettement inférieur à l'unité lui aussi. De plus $\alpha(\Omega)$ et $b(\Omega)$ sont des termes lentement variables: $S(\Omega)$ représente donc à peu près le profil Lorentz du pic de saturation.

Remarquons que si on travaille en saturation faible $b \approx \chi/2$ donc $S(\Omega) \propto \alpha_0(\Omega) \times L I_s(\Omega) \mathcal{L}(\Omega, \bar{\Gamma})$. Ainsi malgré le diviseur on retrouve à l'enregistrement les fluctuations de source. En pratique à saturation moyenne ($\chi \approx 2$) cet effet est atténué.

Pour s'affranchir des fluctuations de source à saturation faible il faudrait enregistrer un signal $S'(\Omega) \propto (I - I_0)/(I_0 I_s)$.

Ceci serait possible au prix d'une complication notable due à l'utilisation d'un troisième faisceau donnant un signal proportionnel à I_s .

Indépendamment des effets dus au mélange isotopique, et à une épaisseur optique non négligeable, le profil enregistré est affecté par de nombreuses causes d'élargissement et de déformation que nous allons maintenant examiner.

Un calcul plus précis tenant compte de l'influence du champ saturant sur la polarisation du milieu conduit pour le coefficient d'absorption du faisceau sonde à¹).

$$\alpha'(\Omega) = \alpha(\Omega) + \alpha_0(\Omega) \beta \chi \zeta(\Omega).$$

$\zeta(\Omega)$ est une fonction compliquée de Ω , son effet est maximum au centre de la raie ($\Omega = 0$) où de plus sa valeur numérique est inférieure à l'unité et $\beta = \gamma/\Gamma$. Ce terme supplémentaire est négligeable dans notre cas. χ est de l'ordre de l'unité et la très grande différence des largeurs des deux niveaux de la transition entraîne $\beta \ll 1$.

Nous pouvons négliger l'effet Doppler résiduel dû à la convergence moyenne du faisceau saturant définie par l'angle $\theta \approx \lambda/\pi W_0$ où λ est la longueur d'onde étudiée. L'élargissement correspondant est de l'ordre de $0,4 \times 10^{-2}$ mK.

De même nous négligerons l'élargissement dû au temps de vol δt des atomes dans le faisceau saturant. Si \bar{v} est la vitesse moyenne transversale de ces atomes, $\delta t \approx W_0/\bar{v}$ est de l'ordre de $0,4 \mu s$ temps très supérieur à la durée de l'impulsion laser.

Par contre, nous ne pouvons négliger l'élargissement par saturation représenté par le rapport $\bar{I}/I = \frac{1}{2} [1 + (1 + \chi)^2]$. En effet pour $\chi \approx 2$ on a $\bar{I}/I \approx 1,37$.

De même les effets de pression conduisent à une largeur homogène de la transition sensiblement supérieure à la largeur naturelle. Nous avons vérifié qu'à la pression de vapeur de baryum utilisée ($\approx 10^{-3}$ torr) l'effet est peu important mais la présence du gaz porteur (néon) dont la pression est généralement très supérieure (0,2 à 0,5 torr) entraîne un élargissement de l'ordre de 0,1 mK.

A ces différentes causes fondamentales nous devons ajouter des effets propres à notre montage.

Influence de la source: la largeur finie du mode laser contribue, nous l'avons vu, à un élargissement de l'ordre de 0,2 mK. De plus, le profil laser dissymétrique influence le profil de saturation.

Influence d'une épaisseur optique inhomogène: la vapeur métallique présente un gradient dans la densité des atomes absorbeurs. En l'absence de tout phénomène de saturation les faisceaux I et I_0 subissent des absorptions légèrement différentes. Soit $\alpha_0(\Omega) (1 - \varepsilon)$ le coefficient d'absorption pour le faisceau de référence ($\varepsilon \ll 1$ peut être positif ou négatif) alors:

$$S(\Omega) \propto \alpha_0(\Omega) L b(\Omega) \mathcal{L}(\Omega, \bar{I}) + \varepsilon \alpha_0(\Omega) L.$$

Ainsi au signal de saturation se superpose un fond lentement variable représentant le profil d'absorption en champ faible. Cet effet devient important en saturation faible et plus particulièrement dans les ailes du pic d'absorption saturée, domaine où $b(\Omega) \mathcal{L}(\Omega, \bar{I})$ peut devenir comparable et même inférieur à ε . Sur la fig. 4 nous avons indiqué par un trait discontinu la contribution de cet effet à $\bar{S}(\Omega)$. Pour cet enregistrement la largeur réelle du pic de saturation est de 1,7 mK. Compte tenu des élargissements par saturation, pression et largeur de mode on déduit une largeur naturelle maximum de l'ordre de 0,9 mK. Cette valeur approchée est en assez bon accord avec la largeur naturelle théorique (0,62 mK) due essentiellement à la courte durée de vie du niveau supérieur (8,5 ns); celle-ci a été mesurée par de nombreux auteurs¹⁵).

3.2. Cas où la raie présente une structure. 3.2.1. Intensités relatives des composantes. Pour un champ non saturant, dans les hypothèses du para-

graphe précédent, le coefficient d'absorption peut s'écrire:

$$f_0(\omega) = \sum_i \alpha_0^i \exp - \left(\frac{\omega - \omega_i}{\omega_d} \right)^2,$$

où ω_i est la fréquence de la composante i et pour le signal enregistré on a:

$$S(\omega) \propto L \sum_i \alpha_0^i b(\omega) \mathcal{L}(\omega - \omega_i, \bar{\Gamma}_i) \exp - \left(\frac{\omega - \omega_i}{\omega_d} \right)^2.$$

Si les différentes composantes sont bien séparées du point de vue de la largeur homogène on peut traiter indépendamment chaque résonance et pour la composante i par exemple on a:

$$S(\omega_i) \propto \alpha_0^i L b(\omega_i). \quad (3)$$

Si N_1 et N_2 sont les populations des niveaux supérieurs et inférieurs respectivement: $\alpha_0^i \propto \mu_i^2 (N_2 - N_1)_i$.

Ainsi

$$S(\omega_i) \propto \mu_i^2 (N_2 - N_1)_i b(\omega_i).$$

Deux cas peuvent alors se présenter. Pour une structure isotopique μ^2 et b sont indépendants de l'isotope (si I_s est constant sur toute la structure) et $S(\omega_i) \propto (N_2 - N_1)_i$. Les intensités relatives sont respectées. Pour une structure hyperfine par contre ce n'est pas le cas: μ donc b dépendent de la composante et les intensités relatives sont différentes de celles qu'on observerait en absorption classique. Dans le cas d'une saturation faible il existe cependant une relation simple entre les intensités relatives:

$$b(\omega_i) \simeq \chi_i/2 \quad \text{entraîne} \quad S(\omega_i) \propto (N_2 - N_1)_i \mu_i^4.$$

Supposons $N_1 \ll N_2$. Alors pour deux composantes hyperfines aboutissant à deux sous-niveaux distincts F, F' on a:

$$\frac{S(\omega_F)}{S(\omega_{F'})} = \frac{N_F \mu_F^2}{N_{F'} \mu_{F'}^2} \frac{\mu_F^2}{\mu_{F'}^2}.$$

Ainsi les intensités relatives sont dans le rapport du carré intensités relatives habituelles pondéré par le rapport des poids statistiques des deux niveaux. Un cas particulier est celui de deux composantes ayant même niveau inférieur; dans ce cas, leurs intensités relatives sont dans le rapport des carrés des intensités relatives normales.

Enfin si la saturation n'est pas très faible b dépend moins directement de χ et les écarts aux intensités relatives en absorption classique sont moins importants.

3.2.2. Résonances de croisement. Nous supposons ici que les différentes composantes de la structure ne sont pas séparées du point de vue de la largeur Doppler.

Dans le cas très général où certaines composantes ont un niveau commun (structure hyperfine, structure Zeeman) on peut montrer que pour deux composantes ainsi couplées de fréquence ω_i et ω_j on prévoit trois résonances centrées sur ω_i , ω_j et $(\omega_i + \omega_j)/2$. Les deux premières correspondent aux résonances normales: pour chaque composante il existe des atomes de vitesse longitudinale nulle interagissant avec le faisceau saturant (de fréquence ω_i ou ω_j) et le faisceau sonde. La troisième correspond à une classe d'atomes de vitesse longitudinale non nulle telle qu'ils voient le faisceau saturant [de fréquence $(\omega_i + \omega_j)/2$] coïncider avec l'une des composantes et le faisceau sonde avec l'autre.

Un calcul récent effectué par Holt¹⁶⁾ précise pour un système à trois niveaux l'amplitude de telles résonances parasites, expérimentalement observées par Hansch, Shahin et Schawlow^{7,8)}. Deux cas sont à considérer selon que le niveau commun est le niveau inférieur ou supérieur. Dans le premier cas l'analyse de la perturbation due au faisceau saturant est effectuée directement sur le niveau perturbé. Comme pour une résonance normale, la résonance parasite se traduit par une diminution du coefficient d'absorption pour le faisceau sonde. Le signal correspondant est positif et son intensité est de l'ordre de grandeur de la moyenne géométrique des intensités des résonances des deux composantes. Dans le second cas, l'analyse de la perturbation a lieu sur le niveau non directement perturbé par le faisceau saturant. Si les atomes ayant subi l'absorption restent un temps suffisamment long sur le niveau supérieur le signal de résonance sera positif. Au contraire, si la plupart de ces atomes retournent très vite vers le niveau inférieur (sans avoir subi de collision pouvant modifier leur vitesse) le signal de résonance est négatif. Ainsi dans la configuration à niveau supérieur commun la durée de vie de ce niveau et le temps moyen séparant deux collisions ont une grande influence sur l'importance et le signe de la résonance parasite.

Cette étude met en évidence deux points essentiels dans l'application des techniques d'absorption saturée. Le choix du degré de saturation dépendra de l'importance donnée soit au rapport signal/bruit (élevé pour une saturation importante) soit au pouvoir de résolution (élevé pour une saturation faible). L'aspect des structures enregistrées pourra être fortement perturbé d'une part en raison de la loi sur les intensités relatives, d'autre part à cause de la présence de composantes parasites parfois mal définies quant à leur intensité.

4. *Etude du multiplet hyperfin.* Le baryum 137 est l'isotope impair le plus abondant dans le mélange naturel. Le Laboratoire National d'Oak Ridge nous a fourni

cet isotope, enrichi à 90 % mais contenant encore 10 % de baryum 138. Le produit livré sous la forme stable $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ n'est pas directement utilisable. Pour obtenir le métal on forme par électrolyse un amalgame de l'isotope avec du mercure puis on procède à une distillation lente sous vide¹⁷⁾ *.

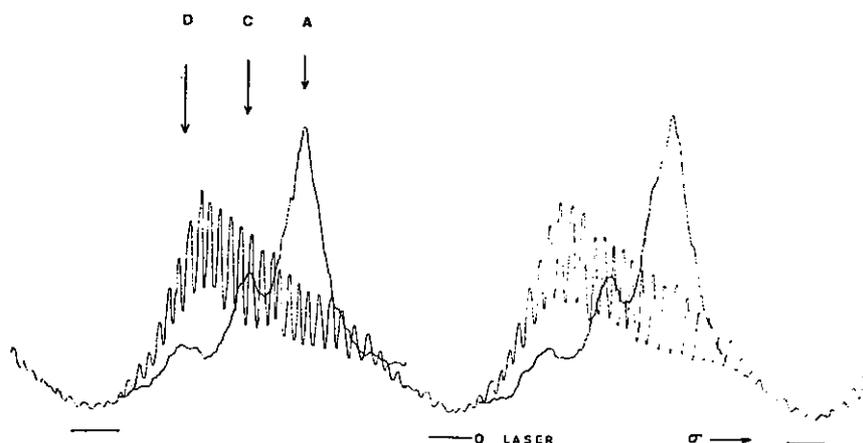


Fig. 5. Enregistrement obtenu avec du baryum 137. La composante la plus faible est fortement perturbée par des résonances parasites.

La fig. 5 donne un exemple d'enregistrement obtenu avec l'isotope 137 ainsi préparé. Nous avons effectué plusieurs séries d'enregistrements correspondant à des conditions variées de pression de vapeur métallique et d'intensité laser. La fig. 6 permet de comparer les intensités relatives pour deux valeurs nettement différentes du paramètre de saturation.

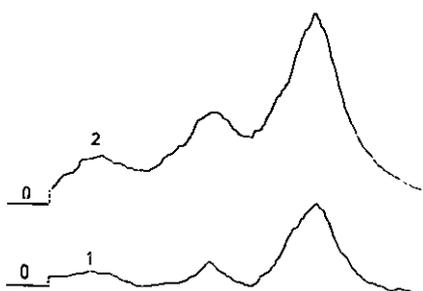


Fig. 6. Comparaison des structures enregistrées pour deux valeurs du paramètre de saturation. Pour la courbe 1 l'intensité laser a été réduite d'un facteur cinq par rapport à la courbe 2.

* Je remercie M. Platzer chef du S.E.A. (Laboratoires du C.E.A. de Fontenay-aux-Roses) et plus particulièrement Mme Duvet et Mlle Petit qui ont procédé à l'élaboration de l'amalgame.

Dans cette étude le nombre d'atomes absorbeurs est réparti sur un grand nombre de composantes. Un bon rapport signal/bruit ne peut être obtenu que pour un degré de saturation assez fort et une densité de vapeur de baryum assez élevée. Ceci, ajouté à la présence dans la vapeur métallique de traces de mercure qu'on ne peut totalement éliminer lors de la distillation, cause un élargissement important et nous n'avons pu résoudre complètement le groupe des composantes enregistrées.

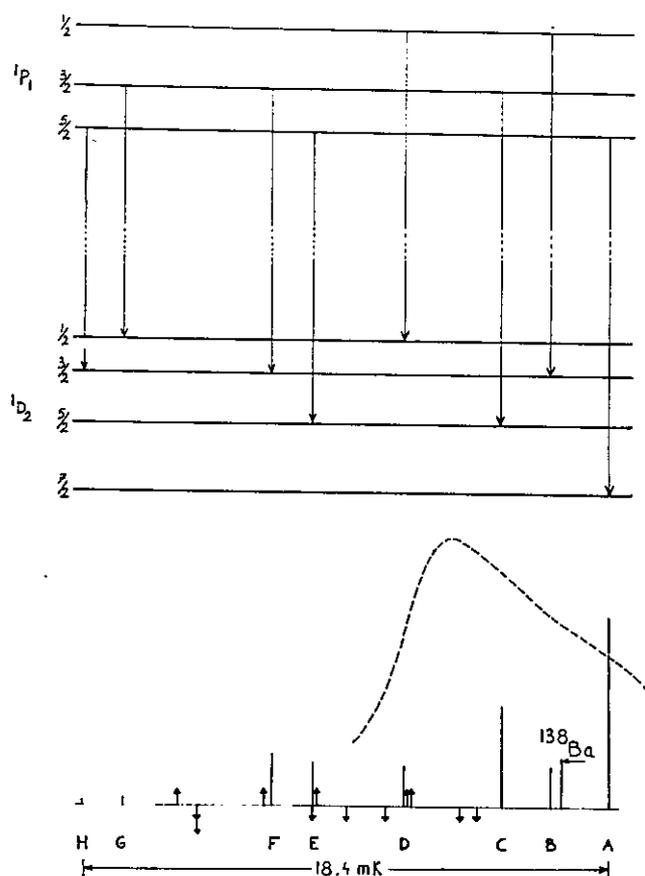


Fig. 7. Structure théorique de la raie $\lambda = 1.5 \mu$ pour le baryum 137. La courbe en pointillés représente le profil laser. Les flèches \downarrow indiquent les résonances de croisement à niveau supérieur commun.

La fig. 7 montre la structure théorique attendue. Les intensités relatives correspondent à une absorption non saturée. Les flèches indiquent la position des résonances parasites possibles. Pour la structure du niveau supérieur nous avons

utilisé les valeurs expérimentales de Jackson et Tuan^{10,17)} obtenues sur la raie de résonance $\lambda = 5535 \text{ \AA}$:

$$A(^1P_1) = -3,61 \pm 0,1 \text{ mK}, \quad B(^1P_1) = 1,94 \pm 0,1 \text{ mK}.$$

Ces valeurs ont été confirmées par d'autres auteurs, notamment par Kluge et Otten¹⁸⁾ qui ont effectué des mesures par croisement de niveau. Pour le niveau inférieur, un calcul en couplage intermédiaire tenant compte de l'interaction entre les niveaux $6s5d (^1D_2)$ et $6s5d (^3D_2)$ donne l'ordre de grandeur de la constante dipolaire. Un calcul plus précis utilisant la méthode du potentiel paramétrique¹⁹⁾ a été effectué par Couarraze au Laboratoire Aimé Cotton²⁰⁾. Après optimisation du potentiel suivant le critère spectroscopique il a obtenu pour les constantes

$$A(^1D_2) = -3,1 \text{ mK}, \quad B(^1D_2) = 0,49 \text{ mK}.$$

Cette valeur de B est obtenue en prenant pour le moment quadropolaire la valeur $Q = 0,20 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ déduite des mesures de Jackson et Tuan²¹⁾. La valeur donnée par Zu Putlitz $Q = 0,28 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ conduirait à

$$B(^1D_2) = 0,69 \text{ mK}.$$

Compte tenu de ces valeurs et de la loi sur les intensités relatives une identification raisonnable de la structure est celle présentée sur la fig. 6. La composante la plus intense correspond à la transition $F = \frac{5}{2} \rightarrow F = \frac{7}{2}$. Elle est fortement perturbée par la présence de la composante due au baryum 138. Les enregistrements effectués avec du baryum naturel permettent seulement de situer celle-ci de façon approchée. En effet l'étalonnage en fréquence ne peut en aucun cas servir de repérage absolu. Nous avons vérifié qu'au cours d'un même enregistrement il n'y a pas de « glissement » du système de franges par rapport à la structure. Par contre d'un enregistrement à l'autre la position des franges est aléatoire. La composante moyenne C est due essentiellement à la transition $F = \frac{3}{2} \rightarrow F = \frac{5}{2}$. La composante faible $F = \frac{1}{2} \rightarrow F = \frac{3}{2}$ est noyée dans les pieds des précédentes. Enfin la composante la plus faible D correspond à $F = \frac{1}{2} \rightarrow F = \frac{1}{2}$ et aux deux composantes parasites très voisines.

Pour extraire les positions réelles des différentes composantes nous avons utilisé un programme de reconstitution de profils mis au point au Laboratoire Aimé Cotton par Luc²³⁾. Son emploi est rendu délicat par l'absence d'information précise sur les intensités relatives et par la présence de plusieurs résonances de croisement. Avant de tenter une reconstitution de profil nous avons analysé leur influence sur le profil enregistré.

Dans la plage spectrale balayée par le laser nous trouvons cinq résonances de croisement. Deux d'entre elles couplent des composantes à niveau inférieur commun (composantes F-B et E-C).

Les composantes F et B sont assez faibles et leur distance est de l'ordre de grandeur de la largeur Doppler. L'intensité de la composante parasite correspondante doit être assez faible devant celle de D. Il n'en est pas de même pour la composante due au couple E, C plus proches et plus intenses; on doit s'attendre à une intensité comparable à celle de D.

En ce qui concerne les résonances couplant des composantes par le niveau supérieur un calcul simple utilisant les résultats de Holt¹⁶), montre que pour le cas étudié leur intensité est très faible. Ceci est dû en partie à l'effet des collisions mais aussi au fait que la plupart des atomes du niveau 1P_1 retournent, très rapidement, vers le niveau fondamental 1S_0 et non vers le niveau métastable. Nous supposons donc négligeable l'influence des résonances de ce type.

Nous avons effectué un calcul de reconstitution de profil pour chaque enregistrement correspondant à des conditions expérimentales données (essentiellement valeur du paramètre de saturation et densité de vapeur métallique). Nous avons fourni au programme un relevé point par point du profil expérimental moyenné sur plusieurs ordres successifs pour chaque enregistrement et corrigé de l'influence de la variation de I_s en fonction de ω . Nous avons supposé que le profil de chaque composante est une fonction de Lorentz dont nous avons laissé libre la largeur. Nous avons alors fait deux séries de calculs.

Dans la première série la petite composante a été supposée simple, hypothèse justifiée par l'incertitude assez grande sur sa position. Son intensité ainsi que celle des autres composantes hyperfines a été laissée libre. Par contre, on a fixé le rapport de l'intensité de la composante du baryum 138 à l'intensité de la composante B. Enfin, nous avons imposé la loi de Casimir. Dans ces conditions on trouve pour le 1D_2

$$A = -3,3 \pm 0,05 \text{ mK}, \quad B = 0,76 \pm 0,15 \text{ mK}.$$

L'incertitude donnée ici représente l'écart maximum par rapport à la valeur moyenne trouvée pour l'ensemble des enregistrements.

Simultanément on obtient une valeur pour le déplacement isotopique 137-138 de la transition :

$$\delta\sigma(138-137) = 3 \pm 0,15 \text{ mK}.$$

Dans la seconde série nous avons tenté une reconstitution de profil en ne tenant compte que de la partie la mieux définie des enregistrements, celle comprenant les composantes A, B et C. Avec des contraintes analogues aux précédentes nous avons trouvé

$$A = -3,4 \pm 0,1 \text{ mK}, \quad B = 0,7 \pm 0,2 \text{ mK}.$$

$$\delta\sigma(138-137) = 3,1 \pm 0,2 \text{ mK}.$$

Les incertitudes réelles sur A , B et $\delta\sigma$ sont certainement supérieures à celles indiquées ci-dessus. En définitive la seule grandeur fixée avec une bonne précision est l'écart entre les composantes A et C :

$$\delta\sigma (A-C) = 4,28 \pm 0,05 \text{ mK.}$$

Si on prend pour B la valeur déduite des calculs de Couarraze pour $Q \approx 0,24 \times 10^{-24} \text{ cm}^2$ cet écart donne pour la constante dipolaire:

$$A = -3,26 \text{ mK.}$$

En définitive, il semble raisonnable de prendre les valeurs suivantes:

$$A(^1D_2) = -3,3 \pm 0,2 \text{ mK,} \quad B(^1D_2) = 0,7 \pm 0,3 \text{ mK.}$$

$$\delta\sigma (138-137) = 3 \pm 0,3 \text{ mK.}$$

Le signe du déplacement isotopique, opposé à celui obtenu par Jackson et Tuan²⁴) sur la raie de résonance s'explique par un effet de volume très faible pour le niveau inférieur.

5. *Conclusion.* Par cette étude nous pensons avoir montré l'intérêt que présente l'application des techniques d'absorption saturée à l'étude de transitions atomiques. Malgré des conditions difficiles nous avons pu obtenir une mesure du multiplet hyperfin et un ordre de grandeur du déplacement isotopique 137-138.

Il semble cependant que cette méthode soit mieux adaptée à la mesure des déplacements isotopiques (en particulier lorsqu'on ne dispose pas d'isotopes séparés) puisque dans ce cas les intensités relatives sont respectées et qu'il n'y a pas de composantes à niveau commun. L'étude des structures hyperfines semble plus délicate en particulier lorsque la structure n'est pas complètement résolue.

Actuellement nous sommes limités à l'étude de transitions d'absorption donnant lieu aussi à l'effet laser ou coïncidant avec des raies laser d'autres éléments. On peut envisager un développement important dès que l'on disposera de laser à longueur d'onde ajustable dans un large domaine ayant en même temps une fréquence très bien définie.

L'intérêt de la méthode ne se limite pas à l'étude de structures hyperfines ou isotopiques. Elle est bien adaptée à la mesure des facteurs de Landé en champ faible. D'autre part l'effet Doppler ne masque plus la largeur homogène de la raie; on peut songer à étudier ainsi les mécanismes des collisions, la mesure des élargissements et des déplacements par pression se faisant presque directement sur le profil homogène de la raie.

RÉFÉRENCES

- 1) Baklanov, E. V. et Chebotaev, V. P., *Soviet Physics-JETP* **33** (1971) 300.
- 2) Haroche, S. et Hartmann, F., *Phys. Rev.* **A6** (1972) 1280.
- 3) Letokhov, V. S., *Commun. Atom. Mol. Phys.* **D2** (1971) 181.
- 4) Uzgiris, E. E., Hall, J. L. et Barger, R. L., *Phys. Rev. Letters* **26** (1971) 289.
- 5) Ouhayoun, M. et Borde, C., *CR Acad. Sc. Paris* **B274** (1972) 411.
- 6) Levenson, M. D. et Schawlow, A. L., *Phys. Rev.* **A6** (1972) 10.
- 7) Hansch, T. W., Shahin, I. S. et Schawlow, A. L., *Phys. Rev. Letters* **27** (1971) 707.
- 8) Hansch, T. W., Shahin, I. S. et Schawlow, A. L., *Nature Physical Science* **235** (1972) 63.
- 9) Cahuzac, P., *J. Phys.* **32** (1971) 499.
- 10) Jackson, D. A. et Tuan, D. H., *Phys. Rev. Letters* **11** (1963) 209.
- 11) Walter, W. T., Solimene, N., Piltch, M. et Gould, G., *IEEE J. Quantum Electronics* (1966) 474.
- 12) Lamb, Jr., W. E., *Phys. Rev.* **A134** (1964) 1429.
- 13) Herriott, D., Kogelnik, H. et Kompfner, R., *Appl. Optics* **3** (1964) 523.
- 14) De Beaumont, M., communication personnelle.
- 15) Dickie, L. O. et Kelly, F. M., *Canad. J. Phys.* **48** (1970) 879.
- 16) Holt, H. K., *Phys. Rev. Letters* **29** (1972) 1138.
- 17) Tuan, D. H., Thèse de Doctorat és. Sciences, Orsay (1965).
- 18) Kluge, H. J. et Otten, E. W., 2ème Conférence de Spectroscopie Atomique (EGAS II), Hainovre (1970).
- 19) Aymar, M., Crance, M. et Klapisch, M., *J. Phys. (Supplément)* **31** (1970) C4-141.
- 20) Couarraze, G., Communication personnelle.
- 21) Lurio, A., *Phys. Rev.* **A136** (1964) 376.
- 22) Zu Putlitz, G., *Ann. Physik* **7** (1963) 248.
- 23) Luc, P. et Gerstenkorn, S., *Astron. and Astrophys.* **18** (1972) 209.
- 24) Jackson, D. A. et Tuan, D. H., *Proc. Roy. Soc.* **A274** (1963) 145.

Au terme de cet exposé je voudrais exprimer ma gratitude à MM. les Professeurs JACQUINOT et CHABBAL pour l'accueil qu'ils m'ont réservé au Laboratoire Aimé Cotton.

M. le Professeur BROCHARD m'a dirigé dans ces recherches. Les conseils éclairés et les encouragements qu'il m'a prodigués tout au long de ce travail m'ont été très précieux. Je l'en remercie très vivement. Qu'il trouve ici l'expression de ma profonde reconnaissance.

Que M. le Professeur KASTLER, mon parrain au C.N.R.S., veuille bien trouver ici l'expression de mes sentiments respectueux et reconnaissants.

Mes remerciements s'adressent également au Dr L. S. GOODMAN avec qui j'ai eu de nombreux contacts très fructueux lors de son séjour au Laboratoire Aimé Cotton.

Ma reconnaissance va aussi à tous mes camarades chercheurs qui, directement ou indirectement, m'ont aidé dans mes travaux. Je voudrais tout particulièrement remercier M. BAUCHE, Mme BRECHIGNAC et Mme CRANCE ainsi que MM. DAMASCHINI, DUONG HONG TUAN, LIBERMAN et VETTER pour leur collaboration désintéressée.

M. Paul LUC, Melle MERLE et Mme SCHWEIGHOFER ont bien voulu effectuer pour moi des travaux sur ordinateur. Je les en remercie vivement.

Les expériences présentées dans ce mémoire ont nécessité de très nombreuses réalisations de verrerie. Je ne voudrais pas manquer d'exprimer ici mes plus vifs remerciements à M. OPPENHEIMER dont la constante disponibilité et la compétence sont irremplaçables au laboratoire. De délicates réalisations d'électronique et de mécanique ont également été nécessaires ; que MM. Jean-Claude LUC et M. FREVILLE trouvent ici l'expression de ma gratitude.

Mes remerciements vont également à Mme FONTAINE et à M. REY qui ont eu la tâche ingrate de dactylographier et d'illustrer ce manuscrit.

BIBLIOGRAPHIE

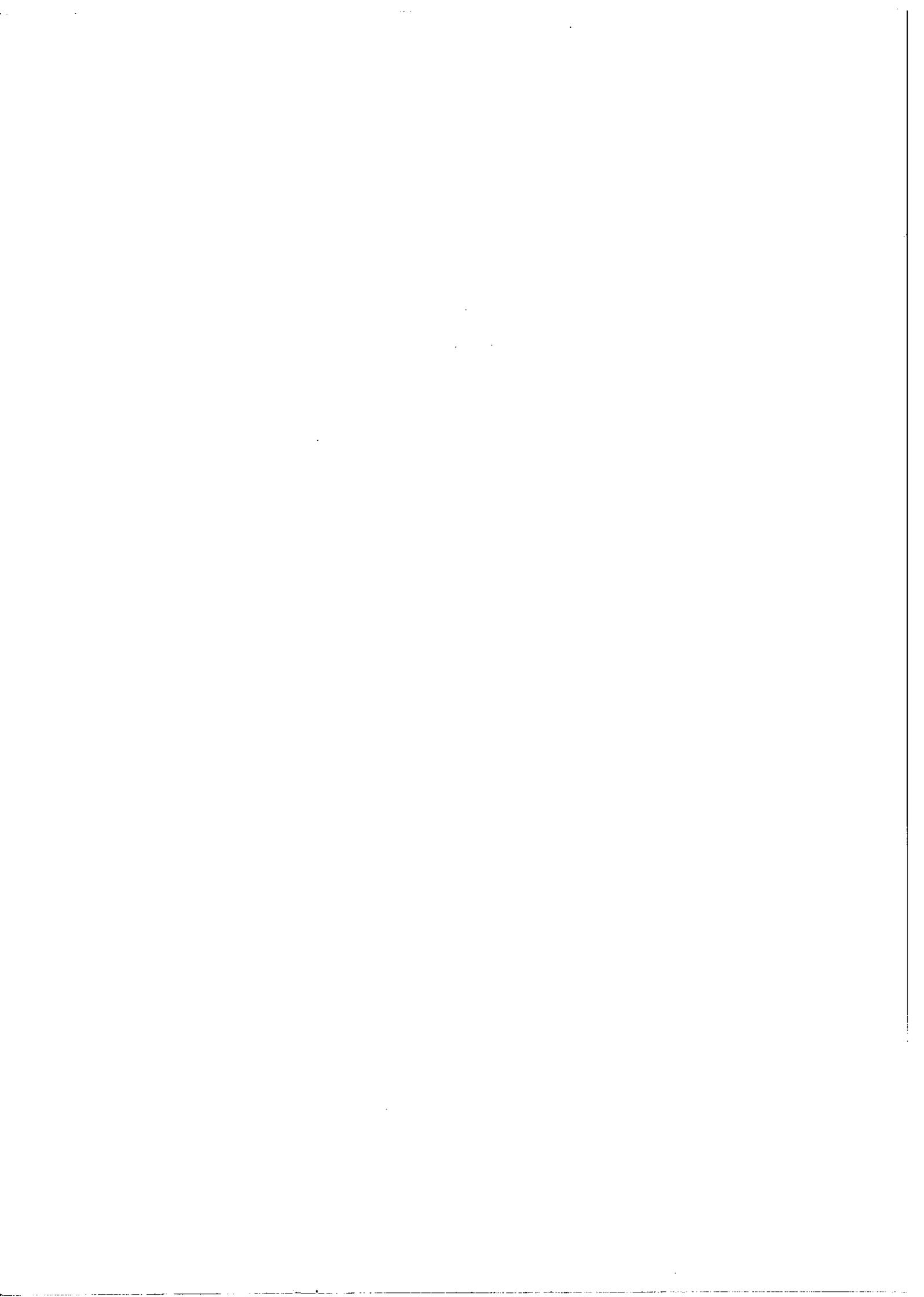
- [1] A. Szöke et A. Javan Phys. Rev. Lett. 10 n° 12 p. 521 (1963)
- [2] R. H. Cordover, T. S. Jaseja et A. Javan,
Appl. Phys. Lett. 7 n° 12 p. 322 (1965)
- [3] J. H. Shafer Phys. Rev. A 3 n° 2 p. 752 (1971)
- [4] R. Vetter Thèse, Orsay (1970)
- [5] M. S. Feld et A. Javan Phys. Rev. 177 n° 2 p. 540 (1969) -
B. J. Feldman et M. S. Feld Phys. Rev. A 5 n° 2 p. 899 (1972)
- [6] R. H. Cordover, R. A. Bonczyk et A. Javan
Phys. Rev. Lett. 18 n° 18 p. 730 (1967)
- [7] T. W. Ducas, M. S. Feld, L. W. Ryan, Jr., N. Skribanowitz et
A. Javan Phys. Rev. A 5 n° 3 p. 1036 (1972)
- [8] M. Hercher et H. A. Pike Opt. Comm. 3 n° 5 p. 346 (1971)
- [9] S. Liberman et J. Pinard Appl. Phys. Lett. - à paraître .
- [10] J. Pinard et J. F. Young Opt. Comm. 4 n° 6 p. 425 (1972)
- [11] R. L. Barger et J. L. Hall Phys. Rev. Lett. 22 n° 1 p. 4 (1969)
- [12] T. W. Hänsch, M. D. Levenson et A. L. Schawlow
Phys. Rev. Lett. 26 n° 16 p. 946 (1971)
- [13] J. L. Hall et C. Bordé Phys. Rev. Lett. 30 n° 22 p. 1101 (1973)
- [14] T. W. Hänsch, I. S. Shahin et A. L. Schawlow
Phys. Rev. Lett. 27 n° 11 p. 707 (1971)
- [15] T. W. Hänsch, I. S. Shahin et A. L. Schawlow
Nat. Phys. Sci. 235 p. 63 (1972)
- [16] C. V. Shank et S. E. Schwarz Appl. Phys. Lett. 13 n° 4 p. 113 (1968)
- [17] P. W. Smith et T. W. Hänsch Phys. Rev. Lett. 26 n° 13 p. 740 (1971)

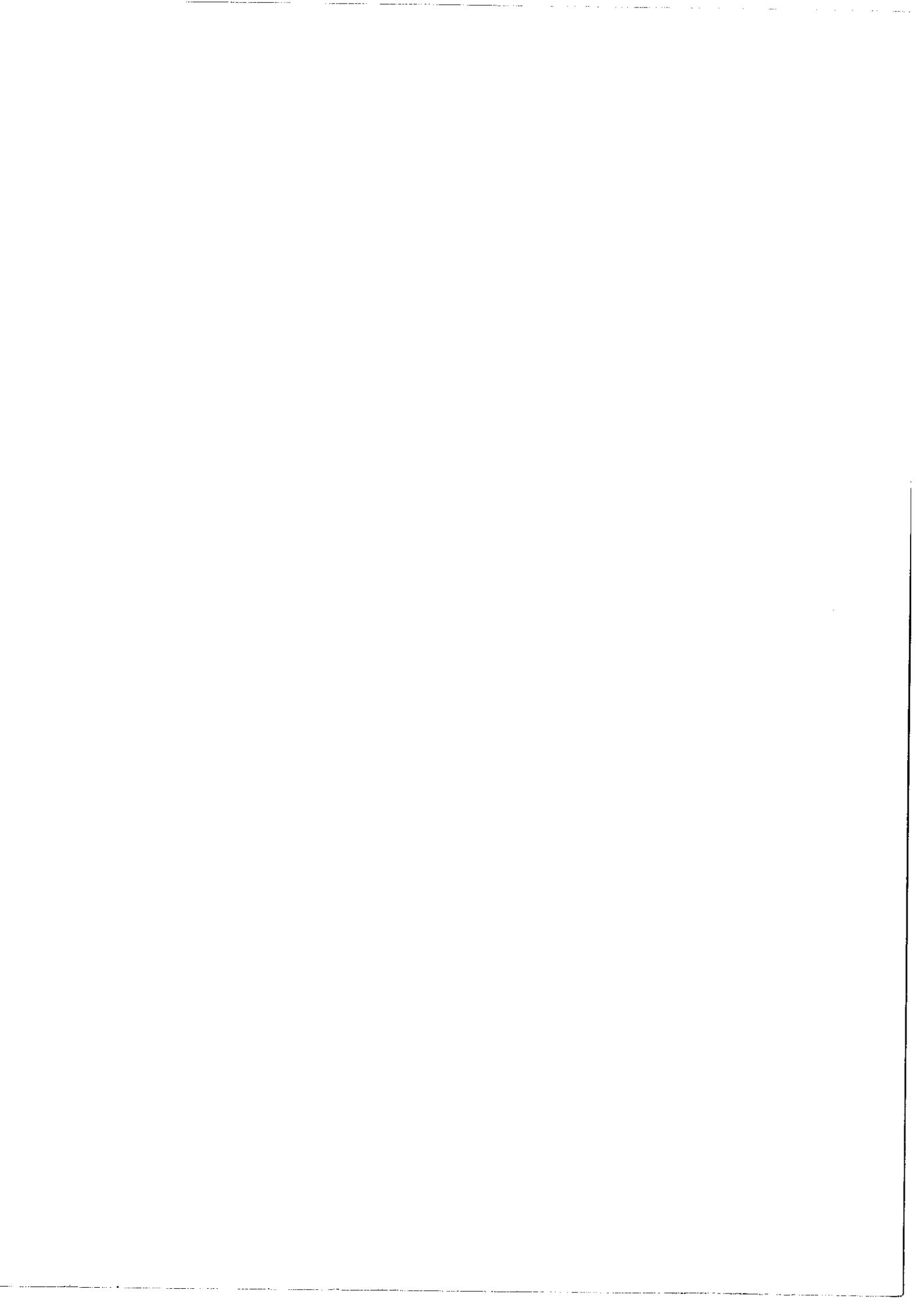
- [18] P. Rabinowitz, S. Jacobs et G. Gould
Appl. Optics 1 n° 4 p. 513 (1962)
- [19] J. D. Ridgen et A. D. White Nature 198 p. 774 (1963)
- [20] C. S. Willet "Laser Lines in Atomic Species" dans "Progress in
Quantum Electronics" Vol. 1 p. 275 Pergamon Press (1971)
- [21] G. G. Petrash Sov. Phys. Uspekhi 14 n° 6 p. 747 (1972)
- [22] G. R. Fowles et W. T. Silfvast
Appl. Phys. Lett. 6 n° 12 p. 236 (1965)
- [23] M. Piltch, W. T. Walter, N. Solimene, G. Gould et
W. R. Bennett, Jr. Appl. Phys. Lett. 7 n° 11 p. 309 (1965)
- [24] W. T. Walter, N. Solimene, M. Piltch et G. Gould
Bull. Am. Phys. Soc. 11 p. 113 (1966)
- [25] J. S. Deech et J. H. Sanders
IEEE J. of Quant. Electr. QE-4 p. 474 (1968)
- [26] W. T. Walter, N. Solimene, M. Piltch et G. Gould
IEEE J. of Quant. Electr. QE-2 p. 474 (1966)
- [27] Ph. Cahuzac Phys. Lett. 32A n° 3 p. 150 (1970)
- [28] A. A. Isaev, P. I. Ischenko et G. G. Petrash
JETP Lett. 6 p. 118 (1967)
- [29] W. T. Silfvast et G. R. Fowles
J. Opt. Soc. Am. 56 n° 6 p. 832 (1966)
- [30] J. S. Deech, J. B. Cole et J. H. Sanders
J. Phys. B (G. B.) 2, 2 p. 147 (1969)
- [31] G. R. Fowles et B. D. Hopkins
IEEE J. of Quant. Electr. QE-3 n° 10 p. 419 (1967)

- [32] W. T. Silfvast et M. B. Klein Appl. Phys. Lett. 17 n° 9 p.400 (1970)
M. B. Klein et W. T. Silfvast " " " 18 n°11 p.482 (1971)
W. T. Silfvast et M. B. Klein " " " 20 n°12 p.501 (1972)
- [33] J. P. Goldsborough Appl. Phys. Lett. 15 n° 6 p. 159 (1969)
- [34] K. G. Hernquist IEEE J. of Quant. Electr. QE-8 n° 9 p. 740 (1972)
- [35] W. T. Silfvast et L. H. Szeto
Appl. Phys. Lett. 19 n° 10 p. 445 (1971)
- [36] W. K. Schuebel Appl. Phys. Lett. 16 n° 11 p. 470 (1970)
- [37] J. A. Piper, G. J. Collins et C. E. Webb
Appl. Phys. Lett. 21 n° 5 p. 203 (1972)
- [38] Y. Sugarawa et Y. Tokiwa Japan J. Appl. Phys. 9 p. 588 (1970)
- [39] B. D. Hopkins et G. R. Fowles
IEEE J. of Quant. Electr. QE-4 n° 12 (1968)
- [40] C. Bréchnac Lab. A. Cotton, Orsay, Communication personnelle
- [41] S. Liberman Thèse, Orsay (1971)
- [42] C. E. Moore Atomic Energy Levels Circular of the N.B.S., 467,
Vol.II p. 189 (1952) - id - Vol. III p. 131 (1958)
- [43] P. Risberg Arkiv för Fysik 9 n° 31 p. 483 (1955)
G. Risberg Arkiv för Fysik 28 n° 32 p. 381 (1965)
- [44] P. P. Sorokin et J. R. Lankard Phys. Rev. 186 n° 2 p. 342 (1969)
- [45] A. N. Dubrovin, A. S. Tibilov et M. K. Shevtsov
Opt. and Spectr. 32 n° 6 p. 685 (1972)
- [46] D. T. Hodges Appl. Phys. Lett. 18 n° 10 p. 454 (1971)
- [47] H. J. Gerritsen et M. E. Heller Appl. Opt.
Supplement on chemical lasers p. 73 (1965)
- [48] W. R. Bennett, Jr. Phys. Rev. 126 n° 2 p. 580 (1962)

- [49] W. E. Lamb, Jr. Phys. Rev. 134 n° 6A p. 1429 (1964)
- [50] D. R. Herriott, H. Kogelnik et R. Kompfner
Appl. Optics 3 n° 4 p. 523 (1964)
- [51] M. de Beaumont Thèse 3ème cycle, Orsay (1973)
- [52] D. R. Herriott et H. J. Schulte Appl. Opt. 4 n° 8 p. 883 (1965)
- [53] L. O. Dickie et F. M. Kelly
Canadian J. of Phys. 48 p. 879 (1970)
- [54] S. Ishii et W. Ohlendorf
Rev. of Scient. Instr. 43 n° 11 p. 1632 (1972)
- [55] R. L. Fork, D. R. Herriott et H. Kogelnik
Applied Optics 3 n° 12 p. 1471 (1964)
- [56] Th. Hänsch et P. Toschek Z. Physik 236 p. 213 (1970)
- [57] E. V. Baklanov et V. P. Chebotaev
Soviet Phys. JETP 33 n° 2 p. 300 (1971)
- [58] S. Haroche et F. Hartmann Phys. Rev. A 6 n° 4 p. 1280 (1972)
- [59] E. V. Baklanov et V. P. Chebotaev
Soviet Phys. JETP 35 n° 2 p. 287 (1972)
- [60] E. V. Baklanov Opt. Spectrosc. 34 n° 6 p. 711 (1973)
- [61] N. G. Basov, O. N. Kompanets, V. S. Letokhov et V. V. Nikitin
Soviet Phys. JETP 32 n° 2 p. 214 (1971)
- [62] J. H. Shirley Phys. Rev. A 8 n° 1 p. 347 (1973)
- [63] H. K. Holt Phys. Rev. Lett. 29 n° 17 p. 1138 (1972)
- [64] M. Guntz Annales de Chim. et de Phys. 8 n° 4 p. 5 (1905)
- [65] Duong Hong Tuan Thèse, Orsay (1965)
- [66] D. A. Jackson et Duong Hong Tuan
Phys. Rev. Lett. 11 p. 209 (1963)

- [67] H. J. Kluge et E. W. Otten 2ème Conférence de Spectroscopie
Atomique, Hanovre (1970)
- [68] G. Couarraze - Communication personnelle.
- [69] M. Aymar, M. Crance et M. Klapisch
J. Phys. Supplem. 31 p. C4-141 (1970)
- [70] F. Roddier Annales d'Astrophysique 28 n° 3 p. 463 (1965)
- [71] C. W. Allen Astrophysical Quantities 2ème édition p. 45
Univ. London (1963)
- [72] I. S. Shahin et T. W. Hänsch Opt. Comm. 8 n° 4 p. 312 (1973)





Service de Reprographie
C . N . R . S .
Gif