

THÈSE
DE DOCTORAT D'ÉTAT ÈS-SCIENCES PHYSIQUES

PRÉSENTÉE À L'UNIVERSITÉ DE PARIS-SUD

CENTRE D'ORSAY

PAR

Michèle CRANCE - GODIGNON

LABORATOIRE AIMÉ COTTON

C. N. R. S.

POUR OBTENIR

LE GRADE DE DOCTEUR ÈS-SCIENCES

Contribution méthodologique au problème de la mesure des
forces d'oscillateur par étude de la dispersion anormale au
voisinage d'une raie d'absorption.

SOUTENUE LE Fev. 1976 DEVANT LA COMMISSION D'EXAMEN

M. P. JACQUINOT : Président
MM. P. BARCHEWITZ }
J. BROCHARD } Examineurs
A. OMONT }
H. Van REGEMORTER ... }

91- 24 H-I, (91)

TABLE DES MATIERES

<u>INTRODUCTION</u>	1
<u>CHAPITRE I</u> - Méthodes expérimentales de détermination	
des forces d'oscillateur	9
<u>I Grandeurs fondamentales</u>	11
1 Coefficients d'Einstein	11
2 Probabilités de transition	13
3 Forces d'oscillateur	14
4 Forces de raie	15
5 Durées de vie	15
6 Mesure de probabilités de transition	16
7 Probabilités de transition relatives	17
<u>II Mesures de durée de vie</u>	19
1 Introduction	19
2 Méthodes de mesure de durée de vie	20
a) Observation de la décroissance	
exponentielle	20
α - Méthode des coïncidences retardées	20
β - Méthodes de corrélation	
photon-photon et électron-photon ..	21
γ - Evolution le long d'un jet	23
b) Méthode de modulation	24
c) Etude de profils	25
3 Difficultés d'interprétation	26
a) Problèmes liés à l'étude d'un gaz	26

b) Problèmes liés à l'excitation non sélective des niveaux	27
4 Conclusion	29
<u>III Mesures de probabilités de transition</u>	30
1 Introduction	30
2 Mesures d'émission	31
3 Mesures d'absorption	33
4 Mesures de dispersion	35
5 Conclusion	35
Références	37

<u>CHAPITRE II</u> - Mesure des forces d'oscillateur par étude de la dispersion anormale au voisinage d'une raie d'absorption. Méthode des crochets photographique	41
--	----

<u>I Indice de réfraction au voisinage d'une raie d'absorption</u>	44
1 Dispersion anormale	44
2 Calcul de l'indice de réfraction	46
3 Influence de la largeur homogène - Effets de saturation	48
4 Influence de l'effet Doppler	50
5 Principe de la mesure de forces d'oscillateur par étude de la dispersion anormale	51

<u>II Méthode des crochets photographique</u>	53
1 Dispositif expérimental et principe	53
2 Conditions d'application et précision	56
3 Conclusion	58
<u>CHAPITRE III</u> - Deux méthodes photoélectriques de mesure des forces d'oscillateur par étude de la dispersion anormale au voisinage d'une raie d'absorption	61
<u>I Introduction</u>	63
<u>II Méthode des crochets photoélectrique</u>	67
1 Principe	67
2 Difficultés expérimentales	69
3 Conditions de mesure. Précision	71
4 Comparaison avec la méthode photographique	75
<u>III Mesure de forces d'oscillateur de transitions infrarouges</u>	79
1 Introduction	79
2 Indice de réfraction le long de la bande 2-0 de CO	79
3 Application de la méthode des crochets photoélectrique à l'étude de la bande 2-0 de CO	81
4 Conclusion	83

<u>IV Utilisation d'un laser monomode accordable</u>	84
1 Introduction	84
2 Dispositif expérimental - principe	85
3 Description des courbes obtenues	86
4 Précision des mesures. Valeurs accessibles à la mesure	87
5 Conclusion	89
<u>V Comparaison avec d'autres méthodes photoélectriques</u> <u>de mesure de l'indice de réfraction</u>	91
1 Mesure directe	91
2 Spectroscopie d'amplitude	93
 <u>CONCLUSION</u>	 95
 <u>APPENDICE I</u> - Calcul semi classique de l'indice de réfraction d'un gaz	 99
 <u>APPENDICE II</u> - Possibilité d'utiliser une source monochromatique en impulsion	 107

ARTICLES PRESENTES

ANNEXE I

M. CRANCE, Rev. Phys. Appl. 8 325 (1973)

Mesure des forces d'oscillateur dans le spectre du
Néon I par étude de la dispersion anormale.

ANNEXE II

M. CRANCE, J. VERGES, J. Phys. B 8 3001 (1975)

Measurements of line strengths in the 2-0 band of CO .

ANNEXE III

M. CRANCE, P. JUNCAR, J. PINARD

J. Phys. B 8 2461 (1975)

A new method for measuring relative oscillator strengths
using a CW dye laser.

INTRODUCTION

Les forces d'oscillateur sont des quantités sans dimension qui apparaissent dans l'interprétation de l'ensemble des phénomènes radiatifs en physique atomique. La force d'oscillateur d'une transition est proportionnelle à la probabilité de transition correspondante. Dans différents domaines de la physique, la connaissance des forces d'oscillateur est nécessaire pour une interprétation quantitative des phénomènes observés ; nous en citerons quelques exemples.

En Astrophysique, la principale base expérimentale est fournie par les spectres atomiques ou moléculaires observés de la terre ou maintenant de satellites. La seule connaissance de la position des raies est insuffisante pour permettre d'extraire toutes les informations contenues dans ces spectres. Quelquefois même, ceux-ci se présentent sous une forme si complexe que leur simple dépouillement nécessite la connaissance des forces d'oscillateur des transitions concernées et de toute façon, si l'on veut remonter aux paramètres physiques (abondances, températures ...) qui caractérisent le milieu stellaire ou les atmosphères planétaires, il est tout à fait essentiel de disposer de forces d'oscillateur préalablement déterminées en laboratoire.

Dans la physique des plasmas et des décharges, un des problèmes majeurs est de déterminer et d'étudier les mécanismes de peuplement des niveaux atomiques. Ceux-ci peuvent être séparés en deux classes : processus radiatifs (absorption et émission) et non radiatifs

(collisions - transferts d'énergie, ...). Pour préciser ces derniers, il est indispensable de pouvoir éliminer l'influence des premiers et ceci ne peut se faire que si l'on connaît les forces d'oscillateur des diverses transitions impliquées. Ces problèmes se rencontrent également dans la physique des lasers à gaz où l'on étudie les conditions dans lesquelles une inversion de population entre deux ou plusieurs niveaux peut se produire. Dans ce domaine, il est important de connaître les forces d'oscillateurs des transitions concernées puisque ce sont les processus radiatifs eux-mêmes qui sont observés.

Les forces d'oscillateur jouent également un rôle important dans certains domaines de la physique appliquée. Ainsi, de nombreuses méthodes d'analyse et de dosage reposent sur l'étude soit de l'absorption, soit de l'émission des composés étudiés. On caractérise chaque élément par une ou plusieurs transitions dont il est indispensable de bien connaître la force d'oscillateur.

Ces quelques exemples montrent que les forces d'oscillateur interviennent dans des domaines différents de la physique et y jouent des rôles très divers. Suivant les cas, pour un spectre donné, il est souhaitable de connaître les forces d'oscillateur, soit de quelques transitions avec une grande précision, soit de nombreuses transitions même de façon approchée. Ce sont ces besoins variés qui ont suscité la mise en application de méthodes très différentes, les unes très précises mais peu générales, les autres moins précises mais applicables de manière très extensive.

Comme pour la plupart des grandeurs physiques caractéristiques des atomes, des calculs de force d'oscillateur ont été faits. En effet, les théoriciens de la structure atomique ont mis au point de nombreuses méthodes de calcul des fonctions d'onde des états atomiques. Le meilleur test de ces méthodes est la comparaison des valeurs calculées avec des valeurs mesurées de façon aussi précise que possible. Dans cette comparaison les forces d'oscillateur jouent un rôle privilégié car elles sont particulièrement sensibles à la qualité des fonctions d'onde utilisées pour les calculer. Ainsi la détermination de valeurs expérimentales précises de forces d'oscillateur permet de faire progresser les méthodes théoriques. A l'inverse, ces méthodes peuvent souvent fournir des valeurs théoriques très précieuses pour des transitions difficilement accessibles à la mesure.

Dans le premier chapitre, nous rappellerons d'abord comment les forces d'oscillateur interviennent dans l'interprétation des processus radiatifs les plus simples, puis nous exposerons le principe des diverses méthodes qui permettent de les mesurer.

Ces méthodes, dont certaines sont très anciennes, ont évolué au fur et à mesure des progrès de la physique et de la technologie ; elles sont devenues plus précises, leur domaine d'application s'est étendu. La méthode dite "des crochets" semble avoir échappé à cette évolution. Cette méthode consiste à mesurer les forces d'oscillateur à partir de l'étude de la dispersion anormale qui se produit au voisinage d'une raie d'absorption. Cette étude est faite sur la photographie du

spectre cannelé fourni par un interféromètre à deux ondes éclairé en lumière blanche dont un bras contient la vapeur à étudier. Dans le second chapitre nous rappelons comment la dispersion anormale au voisinage d'une raie d'absorption est liée à la force d'oscillateur de la transition. Nous discutons les perturbations qu'apportent à l'indice de réfraction l'utilisation de lumière intense, les collisions et l'effet Doppler produits dans la vapeur. Nous décrivons ensuite la méthode des crochets photographique.

Bien que les performances des plaques photographiques aient été beaucoup améliorées depuis quelques années, leur utilisation limite le domaine d'application de la méthode des crochets. En effet, il est impossible d'étudier ainsi les transitions infrarouges. C'est pour remédier à cet inconvénient que nous avons cherché à modifier cette méthode. Nous avons mis au point deux méthodes fondées sur les mêmes principes que la méthode des crochets — étude de la dispersion anormale à l'aide d'un interféromètre à deux ondes — mais utilisant des récepteurs photo-électriques, donc applicables à l'étude des transitions infrarouges. Dans le troisième chapitre, après une brève description de ces méthodes, nous discutons de leur précision et des possibilités qu'elles offrent. Les expériences que nous avons faites en utilisant ces méthodes font l'objet des articles placés en annexe. Une première démonstration de la première méthode a été la mesure des forces d'oscillateur relatives de transitions visibles ($2p^5_3s - 2p^5_3p$) du Néon I pour lesquelles on disposait de résultats antérieurs assez précis (calculs et mesures d'intensité). Nous avons utilisé cette méthode pour mesurer la force

de bande de la bande 2-0 de l'oxyde de carbone, située aux environs de $4\,200\text{ cm}^{-1}$, montrant ainsi la possibilité d'utiliser la méthode des crochets photoélectrique dans l'infrarouge. D'autre part, nous avons mis au point une deuxième méthode photoélectrique utilisant un laser à colorant monomode accordable fonctionnant en régime continu. Pour cette méthode nous avons remesuré deux des raies précédemment étudiées dans le Néon. Cette mesure, qui doit être considérée comme préliminaire, nous a permis d'obtenir une précision supérieure à celle obtenue dans la première méthode et de montrer dans quelle mesure cette précision peut encore être augmentée par diverses améliorations techniques.

CHAPITRE I

Méthodes expérimentales de détermination des forces d'oscillateur.

I Grandeurs fondamentales.

- 1 Coefficients d'Einstein.
- 2 Probabilités de transition.
- 3 Forces d'oscillateur.
- 4 Forces de raie.
- 5 Durées de vie.
- 6 Mesure de probabilités de transition.
- 7 Probabilités de transition relatives.

II Mesures de durée de vie.

- 1 Introduction.
- 2 Méthodes de mesure de durée de vie.
 - a) Observation de la décroissance exponentielle.
 - α - Méthode des coïncidences retardées.
 - β - Méthodes de corrélation photon-photon et électron-photon.
 - γ - Evolution le long d'un jet.

- b) Méthode des déphasages.
 - c) Etudes de profils.
- 3 Difficultés d'interprétation.
- a) Problèmes liés à l'étude d'un gaz.
 - b) Problèmes liés à l'excitation non sélective des niveaux.
- 4 Conclusion.

III Mesures de probabilités de transition.

- 1 Introduction.
- 2 Mesures d'émission.
- 3 Mesures d'absorption.
- 4 Mesures de dispersion.
- 5 Conclusion.

I. Grandeurs fondamentales.

Plusieurs grandeurs atomiques sont introduites dans l'interprétation des processus d'interaction matière-rayonnement : les coefficients d'Einstein, les probabilités de transition, les forces d'oscillateur, les forces de raie Cette diversité tient à des raisons historiques. Chacune d'elles a été introduite pour la description d'un phénomène particulier. Elles sont liées par des relations simples et dans la description des phénomènes radiatifs on pourrait se contenter de n'utiliser que l'une d'entre elles. Nous allons montrer comment ces grandeurs sont introduites et quelles sont leurs relations. Nous exposerons ensuite comment elles peuvent être mesurées dans le cas des transitions dipolaires électriques à un photon.

1. Coefficients d'Einstein.

Ces coefficients interviennent dans la description d'un ensemble d'atomes en interaction avec un champ électromagnétique à large bande, isotrope, de faible intensité (approximation linéaire) en système fermé.

Les atomes sont décrits comme des systèmes à deux niveaux dégénérés i (niveau inférieur) et j (niveau supérieur). Cette approximation n'est valable que si le rayonnement couvre une bande de fréquence limitée, qui contient comme seule fréquence de résonance de l'atome, celle qui correspond à la transition $i-j$.

Les paramètres concernant les niveaux sont indicés i et j

E_i, E_j énergies des niveaux. — $j E_j g_j N_j \Phi_{jm_j}$
 g_i, g_j poids statistiques. — $i E_i g_i N_i \Phi_{im_i}$
 N_i, N_j densités de population.
 Φ_{im_i}, Φ_{jm_j} fonctions d'onde des états correspondant à ces niveaux.

Le rayonnement est caractérisé par le densité spectrale d'énergie $\rho(\nu)$ à la fréquence ν .

Le nombre des atomes du système est constant. On considère des atomes à deux niveaux, donc les variations des densités de population des niveaux i et j pendant l'intervalle de temps dt se compensent : $dN_i + dN_j = 0$. La variation de ces populations par interaction avec le rayonnement correspond à trois effets :

— absorption de rayonnement à partir du niveau i :

$$(dN_i)_{\text{abs.}} = -B_{ij} \rho(\nu_{ij}) N_i dt,$$

— émission induite à partir du niveau j :

$$(dN_i)_{\text{em. ind.}} = B_{ij} \rho(\nu_{ij}) N_j dt,$$

— émission spontanée à partir du niveau j :

$$(dN_i)_{\text{em. sp.}} = A_{ji} N_j dt.$$

L'équilibre du système se traduit par

$$dN_i = (dN_i)_{\text{abs.}} + (dN_i)_{\text{em. sp.}} + (dN_i)_{\text{em. ind.}} = 0$$

soit
$$B_{ij} \rho(\nu_{ij}) N_i + B_{ji} \rho(\nu_{ij}) N_j + A_{ji} N_j = 0$$

A_{ji} , B_{ij} , B_{ji} sont les coefficients d'Einstein et ils sont liés par les relations suivantes :

$$g_i B_{ij} = g_j B_{ji} \quad A_{ji} = \frac{8\pi h \nu^3}{c^3} B_{ji} .$$

2. Probabilités de transition.

A_{ji} peut être défini sans référence au rayonnement extérieur, c'est la probabilité, par unité de temps, pour qu'un atome dans un état j émette un photon de fréquence ν dans une direction et un état de polarisation quelconque et passe dans l'état i . Les relations entre les coefficients d'Einstein sont valables dans le cas où le rayonnement électromagnétique est isotrope. Quand on réalise une expérience d'absorption ou d'émission induite, on étudie l'interaction d'atomes avec un champ électromagnétique non isotrope qui peut être décrit par une superposition d'ondes planes monochromatiques de vecteur d'onde \vec{k} , de polarisation $\vec{\epsilon}$ et la réponse du milieu n'est pas nécessairement isotrope, il faut donc introduire des coefficients $B_{ij}(\vec{\epsilon}, \vec{k})$ et $B_{ji}(\vec{\epsilon}, \vec{k})$ décrivant l'absorption ou l'émission induite d'une onde plane caractérisée par $\vec{\epsilon}$ et \vec{k} . Le champ électromagnétique peut également être décomposé en ondes multipolaires et d'autres coefficients différentiels seront alors introduits. De même, la probabilité d'émission spontanée d'un photon de polarisation $\vec{\epsilon}$, de vecteur d'onde \vec{k} , à partir d'un niveau Φ_{jm_j} est fonction de ces caractéristiques. Nous ne nous intéressons ici qu'aux transitions

dipolaires électriques à un photon (très prépondérantes dans le domaine optique où l'on peut faire l'approximation des grandes longueurs d'onde) et dans ce cas, par application du théorème de Wigner-Eckart, on peut montrer que les probabilités de transition (par émission spontanée, émission induite ou absorption) se factorisent en produit d'un facteur purement géométrique et d'une grandeur caractéristique de l'atome : la probabilité de transition A_{ji} .

3. Forces d'oscillateur.

Les forces d'oscillateur ont été primitivement introduites dans la description classique des phénomènes d'absorption et de dispersion. L'atome est considéré comme un oscillateur soumis à des oscillations entretenues par le champ électromagnétique. On considère que le rayonnement électromagnétique présent couvre une bande de fréquence limitée comprenant une seule fréquence propre du système, c'est ce qui permet d'admettre que seule une transition est affectée par l'interaction. Pour décrire correctement les phénomènes, il faut supposer que N_i atomes, oscillant sur une bande étroite de fréquence centrée sur ν_{ij} se comportent comme \mathcal{N}_i oscillateurs où $\mathcal{N}_i = N_i f_{ij}$.

La force d'oscillateur est liée aux coefficients d'Einstein par la relation

$$f_{ij} = 4\pi\epsilon_0 \frac{m\nu}{\pi e^2} B_{ij} .$$

4. Force de raie.

C'est la grandeur isotrope fondamentale qui s'introduit dans l'interprétation théorique de tous les phénomènes radiatifs. Elle est obtenue en éliminant de l'élément de matrice carré d'un opérateur transition de caractéristiques multipolaires bien déterminées les facteurs purement géométriques. Plus précisément, elle est égale au carré de l'élément de matrice réduit de cet opérateur transition entre les deux états considérés. Dans le cas des transitions dipolaires électriques à un photon, la force de raie s'exprime par

$$S_{ij} = \sum_{m_i, m_j} |\langle \Phi_{im_i} | e \vec{r} | \Phi_{jm_j} \rangle|^2 .$$

La probabilité de transition est liée à la force de raie par

$$A_{ji} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{32\pi^3 \nu_{ij}^3}{3\hbar c^3} \frac{S_{ij}}{g_j}$$

et on en tire

$$f_{ij} = \frac{4\pi m \nu_{ij}}{3\hbar e^2} \frac{S_{ij}}{g_i} .$$

5. Durée de vie.

Les grandeurs définies précédemment concernaient une transition, la durée de vie concerne un niveau. On considère maintenant l'ensemble des niveaux d'un atome ; le niveau j peut se désexciter par

émission spontanée vers plusieurs niveaux inférieurs i avec la probabilité de transition A_{ji} , l'évolution de la population du niveau j sous l'effet de l'émission spontanée est régie par l'équation

$$d N_j = - \sum_i A_{ji} N_j dt$$

$$N_j = N_j(0) \exp(-t \sum_i A_{ji}) .$$

La durée de vie du niveau j est τ_j donnée par

$$\frac{1}{\tau_j} = \sum_i A_{ji} .$$

6. Mesures de probabilités de transition.

En fait, les seules grandeurs directement accessibles à la mesure sont soit des durées de vie (dans les expériences résolues en temps par exemple), soit des quantités qui sont le produit d'une probabilité de transition par une densité de population $N_\alpha A_{ji}$.

Ce n'est que dans quelques cas particuliers que la mesure d'une durée de vie permet de connaître une probabilité de transition. Ceci arrive évidemment si le niveau considéré ne peut se désexciter que par une seule transition dipolaire électrique (c'est le cas de nombreux niveaux résonnants). On est ramené à la même situation si une probabilité de transition dans la somme $\sum_i A_{ji}$ est beaucoup plus grande que les autres (c'est le cas par exemple du niveau 2^1P_1 de l'hélium qui peut se désexciter par deux transitions dont les probabilités respectives sont $1.8 \cdot 10^9 \text{ s}^{-1}$ et $2 \cdot 10^6 \text{ s}^{-1}$).

La détermination de produits $N_{\alpha} A_{ji}$ ne fournit la probabilité de transition A_{ji} que si N_{α} peut être mesuré. On peut cependant obtenir des valeurs relatives de probabilités de transition si l'on se place dans un cas où N_{α} est le même pour plusieurs produits $N_{\alpha} A_{ji}$ mesurés. Les produits $N_{\alpha} A_{ji}$ sont les grandeurs mesurées dans les expériences d'émission, d'absorption ou de dispersion.

7. Probabilités de transition relatives.

Par des mesures d'émission sur un ensemble de transitions de même niveau supérieur j , on obtient une série de valeurs proportionnelles à A_{ji} , pour diverses valeurs de i , en d'autres termes, on mesure alors des rapports de branchement. Quand il n'est pas possible de déterminer N_j , on peut cependant obtenir des probabilités de transition absolues à partir de ces mesures : si l'on connaît la durée de vie du niveau j et que toutes les transitions $i \rightarrow j$ de niveau supérieur j ont été étudiées, on peut déterminer le coefficient de proportionnalité sachant que la somme des probabilités de transition est l'inverse de la durée de vie.

Par des mesures d'absorption ou de dispersion sur un ensemble de transitions de même niveau inférieur i , on obtient une série de valeurs proportionnelles à $(N_i - N_j \frac{g_i}{g_j}) A_{ji}$, ce sont des probabilités de transition relatives si, pour toutes ces transitions, $N_i \gg N_j \frac{g_i}{g_j}$, dans les conditions de l'expérience. S'il n'est pas possible de

déterminer N_i , pour obtenir une série de valeurs absolues à partir d'une série de valeurs relatives, il faut connaître la valeur absolue de l'une des probabilités de transition.

On voit que les trois types de mesure - durée de vie-émission-absorption ou dispersion - sont complémentaires.

Nous décrivons les principales méthodes de mesure de durée de vie et de probabilités de transition, relatives et absolues.

II. Mesures de durée de vie.

1. Introduction.

De nombreuses méthodes de mesure de durée de vie ont été proposées, certaines sont très anciennes. La précision qu'elles permettent d'atteindre et leur champ d'application ont évolué avec les progrès de la technique et tout particulièrement ceux de l'électronique. On peut caractériser ces méthodes par la nature de la grandeur mesurée - un temps - une distance parcourue - un déphasage - la largeur d'une courbe... . Dans l'application de ces diverses méthodes, pourtant très différentes, a priori, on rencontre des difficultés de même origine, qui tiennent à l'état du milieu étudié (jet ou vapeur) et à la méthode d'excitation des atomes (lumière résonnante - bombardement électronique - décharge - passage d'un jet d'ions rapides à travers une lame). Nous décrirons brièvement ces méthodes puis nous évoquerons les problèmes liés au mode d'excitation des atomes et à l'état du milieu.

2. Méthodes de mesure de durées de vie.

a) Observation de la décroissance exponentielle.

Un atome, initialement dans un niveau j évolue vers les niveaux i inférieurs en émettant spontanément un photon, avec une probabilité par unité de temps A_{ij} pour les photons de fréquence $\nu_{ij} = \frac{E_j - E_i}{h}$. Pour une collection d'atomes, la population du niveau j décroît exponentiellement avec une constante de temps $\tau_j = \frac{1}{\sum_i A_{ij}}$, c'est-à-dire que $N_j(t) = N_j(0) e^{-\frac{t}{\tau_j}}$.

L'intensité de la lumière émise sur l'une quelconque des transitions $j \rightarrow i$ est proportionnelle à $N_j(t)$ et son étude permet de mesurer τ_j . C'est ainsi que Holzberlein (1) étudie la lumière émise par un gaz après une impulsion excitatrice en observant sur un oscilloscope le signal fourni par un photomultiplicateur qui reçoit cette lumière. Cette méthode a été améliorée par Pendleton et Hughes (2) et plus récemment par Walther (3), mais des progrès plus décisifs ont été faits avec la méthode des coïncidences retardées et les méthodes de corrélations dans lesquelles on détecte la lumière émise photon par photon. Enfin la décroissance exponentielle est également étudiée sur des jets monocinétiques rapides excités en un point.

α - Méthode des coïncidences retardées.

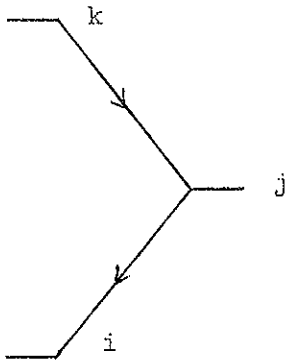
Les atomes sont excités par une impulsion très brève à l'instant t , on détecte les photons ν_{ij} émis par les atomes, entre les instants $t + \Delta t$ et $t + \Delta t + \delta t$ (Δt varie de 0 à quelques durées de

vie du niveau étudié, δt est petit devant la durée de vie). Cette méthode doit son nom de méthode des coïncidences retardées au fait que, dans ses premières applications, on cherchait la coïncidence entre l'impulsion ayant provoqué l'excitation, "retardée" électroniquement d'un temps Δt , et l'arrivée d'un photon. Dans ces conditions on détectait l'arrivée d'un photon après le passage d'une impulsion excitatrice. La méthode conduit à des mesures très longues. L'utilisation d'analyseurs multicanaux de grande résolution en temps permet d'étudier, après le passage d'une impulsion, l'intensité lumineuse émise par les atomes pendant les intervalles successifs $[t + k\delta t$ à $t + (k+1)\delta t]$ (5, 6, 7).

Cette méthode a été appliquée à des vapeurs et à des jets (8) excités soit par de la lumière résonnante, soit par bombardement électronique. Le problème essentiel consiste à produire une excitation qui est interrompue en un temps très court devant la durée de vie à étudier et à détecter l'émission des photons pendant des intervalles de temps également très courts devant la durée de vie. C'est pourquoi les performances de ces méthodes ont suivi les progrès de l'électronique rapide. Dans les expériences conduites actuellement, ces temps caractéristiques peuvent être de 10^{-9} s ou même inférieurs (6).

β - Méthodes de corrélation photon-photon et électron-photon.

Dans les méthodes de corrélation, on étudie la désexcitation en cascade d'un atome d'un niveau k vers un niveau j puis vers un niveau i pour mesurer la durée de vie du niveau j .



On détecte deux types d'évènements : le passage d'un atome du niveau k au niveau j - le passage d'un atome du niveau j au niveau i et on étudie le temps qui sépare deux tels évènements (9-13).

S'il s'agit de corrélations photon-photon on détecte l'arrivée des photons ν_{kj} et des photons ν_{ji} (un par un). S'il s'agit de corrélations électron-photon les atomes sont excités par un faisceau d'électrons monocinétiques et on analyse l'énergie des électrons diffusés ; on détecte les électrons qui ont perdu une quantité d'énergie telle qu'on puisse affirmer qu'ils ont excité un atome dans le niveau j . On détecte d'autre part l'arrivée de photons ν_{ji} .

On observe entre ces deux types d'évènements des corrélations "vraies" quand le premier photon (ou l'électron) concerne le même atome que le photon ν_{ij} . On observe également des corrélations "fortuites" quand les deux évènements concernent deux atomes différents. Ces deux types de corrélations n'obéissent pas à la même loi statistique et on peut séparer les corrélations "fortuites", qui sont aléatoires, des corrélations "vraies" qui correspondent à la désexcitation radiative du niveau j . Mais, comme les corrélations "fortuites" sont beaucoup plus nombreuses que les corrélations vraies, les mesures sont très longues.

Par ces méthodes, on étudie l'évolution de la population du niveau j et on mesure la durée de vie effective de ce niveau dans les conditions

de l'expérience qui, le plus souvent, n'est pas égale à la durée de vie radiative de ce niveau. De plus, dans la méthode des coïncidences retardées, si l'excitation des atomes n'est pas sélective, l'existence de cascades aboutissant au niveau j peut rendre plus difficile l'interprétation des résultats. Nous discuterons plus loin ce problème.

γ) Evolution le long d'un jet.

On excite un jet monocinétique en un point et on étudie la lumière émise par les atomes du jet en fonction de la distance parcourue après l'excitation. Ceci est équivalent à l'étude de la désexcitation, en fonction du temps, d'atomes excités par une impulsion. Une première expérience a été tentée sans succès en 1913 par Dunoyer (16) sur le sodium. Plus tard, Koenig et Ellett (17) mesurent de cette manière la durée de vie du niveau $5s5p\ ^3P_1$ du Cd qui est de 2 μ sec. environ. Pour que des mesures soient possibles, il faut que les atomes parcourent une distance assez grande (quelques cm. au moins) pendant une durée de vie. La vitesse des jets thermiques étant généralement trop faible pour qu'il en soit ainsi, cette méthode a été abandonnée jusqu'à ce que des jets d'ions rapides, excités par passage à travers une lame (Beam Foil Spectroscopy) (18-28) soient mis au point. Il est possible de former des jets d'ions monocinétiques dont la vitesse est proche de la vitesse de la lumière. Après passage à travers une lame, ou une faible épaisseur de gaz, la vitesse du jet reste très grande et la dispersion des vitesses est très peu augmentée [Il est courant d'obtenir des vitesses de 0,1 c ; dans ces conditions un atome parcourt 3 cm. en 10^{-9} s qui est l'ordre de grandeur des plus faibles durées de vie de

niveaux atomiques]. Suivant les conditions - vitesse et nature de la cible - on obtient des ions ou des atomes, dans des niveaux très excités. On étudie l'intensité de la lumière émise sur une raie, en fonction de la position du détecteur le long du jet. Ici encore, l'excitation des atomes n'est pas sélective et on observe des désexcitations par cascades.

b) Méthodes de modulation.

Ces méthodes consistent à étudier la réponse d'un système, non plus à des impulsions d'excitation, mais à une excitation modulée. Le milieu est excité par de la lumière résonnante ou par bombardement électronique, l'intensité étant modulée. Les atomes sont excités périodiquement vers un ensemble de niveaux j et se désexcitent au bout d'un temps de l'ordre de la durée de vie de ces niveaux. La fréquence de modulation étant ν , l'intensité de la lumière émise sur une transition issue du niveau j est modulée sinusoïdalement avec une amplitude proportionnelle à $[1 + (2\pi\nu\tau_j)^2]^{-\frac{1}{2}}$ et présente un retard de phase φ , par rapport à l'excitation, tel que $\operatorname{tg}\varphi = 2\pi\nu\tau_j$. Si la fréquence de modulation est de l'ordre de $\frac{1}{2\pi\tau_j}$, l'étude de l'amplitude de la modulation obtenue aussi bien que l'étude du déphasage en fonction de la fréquence ν permettent de mesurer les durées de vie des niveaux excités. La mesure des déphasages est la méthode la plus fréquemment employée (29-37). La difficulté principale est de produire une excitation de fréquence ν suffisamment grande pour que la condition $\frac{1}{2\pi\tau_j} \sim \nu$ soit respectée (si $\tau = 10^{-9}$ s. ν doit être de l'ordre de 160 MHz).

c) Etudes de profils.

Un niveau de durée de vie τ a une largeur en énergie ΔE de l'ordre de $\frac{h}{\tau}$; la largeur spectrale naturelle d'une transition entre deux niveaux i et j de durées de vie τ_i et τ_j est

$$\Gamma_{ij} = \frac{\Delta E_i + \Delta E_j}{h} = \frac{1}{\tau_i} + \frac{1}{\tau_j} .$$

Diverses méthodes consistent à déterminer ces largeurs par l'étude de profils de raie (38-45). On étudie ainsi le profil de raies d'émission ou de raies d'absorption. Dans ces expériences, une première difficulté est de déterminer la largeur homogène des profils qui sont perturbés par l'effet Doppler. D'autres méthodes consistent à se placer dans des conditions expérimentales telles que l'effet Doppler soit négligeable ; c'est le cas des expériences de croisement de niveaux, de double résonance ou d'absorption saturée qui permettent d'atteindre directement la largeur homogène.

La largeur homogène des profils obtenus dépend des durées de vie des deux niveaux de la transition et, comme ces durées de vie, elle est affectée par les collisions, par la diffusion multiple et, dans certains cas, par les phénomènes de cascades.

3. Difficultés d'interprétation.

Chacune de ces méthodes pose des problèmes expérimentaux spécifiques que nous avons évoqués mais, dans ces expériences, les mêmes difficultés d'interprétation apparaissent, liées d'une part au fait que l'atome ne peut pas toujours être considéré comme isolé et, d'autre part, à l'excitation non sélective des niveaux étudiés.

a) Problèmes liés à l'étude d'un gaz.

Dans un gaz ou une vapeur, les atomes ne peuvent être considérés comme isolés que dans des conditions très particulières (jet peu dense ou vapeur à pression très faible). De ce fait les grandeurs mesurées ne sont généralement pas les durées de vie radiatives des niveaux mais leur durée de vie effective qui dépend de plusieurs phénomènes. D'une part, les collisions entre atomes ont pour effet de diminuer la durée de vie effective des niveaux ; on peut tenter de les éliminer en étudiant le gaz à pression faible et on peut extraire la valeur des durées de vie radiatives à partir des mesures de durées de vie effectives s'il est possible d'extrapoler ces résultats à pression nulle. D'autres phénomènes perturbent les mesures faites sur un gaz, qui sont liés à l'utilisation d'un milieu dont l'épaisseur optique est trop grande. De ce point de vue, les atomes peuvent être considérés comme isolés si tout photon émis par un atome sort du gaz. Si l'épaisseur optique du milieu est trop grande, un photon émis par un atome a une grande probabilité d'être absorbé par un autre atome du gaz. Cet effet

se manifeste de diverses façons suivant les phénomènes observés. Les raies émises par le gaz sont autoabsorbées (46) et leur profil diffère notablement du profil d'une raie émise par un gaz d'épaisseur optique faible. Le rayonnement émis par les atomes est emprisonné (47-51) dans le gaz et la durée de vie apparente des niveaux est plus grande que leur durée de vie radiative. Le phénomène d'emprisonnement de radiation ne sera évité que s'il est possible d'utiliser un milieu d'épaisseur optique assez faible.

Cependant, les signaux observés deviennent généralement très faibles quand on diminue la pression ou l'épaisseur optique du milieu et les mesures sont moins précises.

b) Problèmes liés à l'excitation non sélective des niveaux.

Différentes méthodes sont utilisées pour exciter les atomes vers le niveau à étudier. Seule l'utilisation d'une lumière résonnante permet d'obtenir l'excitation spécifique vers un niveau alors que, dans les autres cas, des niveaux supérieurs au niveau étudié sont aussi peuplés et peuvent en se désexcitant contribuer à le peupler. La population du niveau étudié n'évolue plus seulement sous l'effet de l'émission spontanée et la durée de vie apparente du niveau est alors plus grande que sa durée de vie radiative. C'est le phénomène de cascade (52).

Ceci se produit par exemple dans l'excitation par passage d'un jet d'ions rapides sur une lame où des niveaux très excités de l'atome sont peuplés.

Quand les atomes sont excités par bombardement électronique, on peut éviter de peupler des niveaux supérieurs au niveau étudié en modifiant l'énergie des électrons incidents, mais le maximum d'efficacité dans l'excitation d'un niveau est obtenu avec des électrons dont l'énergie est supérieure à celle du niveau concerné ; il faut donc choisir entre deux situations limites :

- excitation efficace conduisant à des cascades,
- excitation faible, sans cascade, au seuil d'énergie.

Quelle qu'en soit l'origine, le phénomène de cascade se traduit toujours par une évolution non exponentielle de la population des niveaux. Celle-ci n'évolue plus suivant la forme $N_j(0) e^{-\frac{t}{\tau_j}}$ mais comme une somme de termes exponentiels dont les constantes de temps sont τ_j et les durées de vie des autres niveaux intervenant dans la cascade.

La présence, dans une cascade, de niveaux à durée de vie très faible devant τ perturbe très peu les phénomènes. En revanche, si des niveaux de durée de vie de l'ordre de τ ou plus grande que τ contribuent au peuplement du niveau étudié, il est difficile et quelquefois impossible d'obtenir la durée de vie τ à partir de l'étude d'une seule transition.

Les phénomènes observés sont beaucoup plus simples si l'excitation des niveaux est sélective. Pendant longtemps, la seule façon d'obtenir une excitation sélective était de réaliser une lampe avec le corps

étudié. Mais seuls les premiers niveaux excités peuvent être atteints ainsi. L'utilisation de laser accordables permet d'étudier maintenant des niveaux plus élevés, en particulier par excitation à plusieurs photons. Cependant la largeur spectrale de ces sources étant très faible, les processus d'excitation ne sont pas les mêmes qu'avec un rayonnement à large bande de fréquence et des précautions doivent être prises dans l'interprétation des résultats obtenus en transposant les méthodes classiques (A titre d'exemple voir (53) pour la méthode des déphasages).

4. Conclusion.

Les diverses méthodes que nous avons décrites sont toutes appliquées actuellement. On peut définir leurs performances par référence à deux situations extrêmes. Les expériences dans lesquelles l'excitation et la détection sont sélectives conduisent à des mesures longues et leur domaine d'application est restreint, mais les résultats obtenus sont généralement très précis. A l'opposé, les méthodes d'excitation très puissantes que sont le bombardement électronique ou l'excitation par passage à travers une lame permettent d'étudier des niveaux très élevés en énergie, mais la présence de cascades rend l'interprétation des résultats très délicate.

III. Mesure de probabilités de transition.

1. Introduction.

La plupart des méthodes de mesure de probabilités de transition repose sur l'étude de l'un des trois phénomènes - émission - absorption - dispersion. Ce sont des mesures absolues ou relatives selon qu'il est possible ou non de mesurer la densité de population des niveaux.

Nous allons voir dans chaque cas comment les probabilités de transition interviennent dans l'interprétation de ces trois phénomènes.

émission : Pour une transition de niveau inférieur i , de niveau supérieur j , à la fréquence ν_{ij} , l'énergie émise par un volume dV petit, dans l'angle solide $d\Omega$ est

$$d^2I = \frac{d\Omega}{4\pi} (N_j A_{ji}) h\nu_{ij} dV$$

N_j est la densité de population du niveau j .

absorption : Un gaz étant éclairé par un faisceau d'intensité $I_0(\nu)$ à la fréquence ν , après traversée d'une épaisseur dx faible, l'intensité absorbée à la fréquence ν est $dI(\nu) = I_0(\nu) k(\nu) dx$.

$k(\nu)$ est le coefficient d'absorption à la fréquence ν .

la variation de $k(\nu)$ en fonction de ν , c'est-à-dire son profil, dépend des conditions expérimentales, mais le coefficient d'absorption

totale $\int k(\nu) d\nu$ n'en dépend pas

$$\int k(\nu) d\nu = \frac{\pi e^2}{mc} (N_i - N_j \frac{g_i}{g_j}) f_{ij} = 4\pi\epsilon_0 \frac{h\nu}{c} (N_i - N_j \frac{g_i}{g_j}) B_{ij}$$

dispersion : En dehors des raies d'absorption l'indice de réfraction d'un milieu absorbant s'exprime par

$$n-1 = \frac{e^2}{2\pi mc^2} \sum_{i < j} \frac{1}{\sigma_{ij}^2 - \sigma^2} (N_i - N_j \frac{g_i}{g_j}) f_{ij}$$

où la sommation est faite sur tous les niveaux de l'atome classés par ordre croissant d'énergie. Au voisinage d'une transition isolée $j \rightarrow i$ cette formule se réduit à

$$n-n_0 = \frac{e^2}{2\pi mc^2} \frac{(N_i - N_j \frac{g_i}{g_j}) f_{ij}}{\sigma_{ij}^2 - \sigma^2}$$

où n_0 dépend de la transition $j \rightarrow i$. Cette formule est valable tant que $|\sigma - \sigma_{ij}|$ reste nettement plus petit que $|\sigma - \sigma_{mn}|$ pour toutes les transitions où N_n atteint des valeurs de l'ordre de N_i .

Ces formules élémentaires fournissent le principe des méthodes de mesure de forces d'oscillateur. Cependant, dans chaque cas réel, leur utilisation devra être adaptée, suivant les conditions expérimentales du milieu étudié.

2. Mesures d'émission.

Nous avons vu que l'intensité émise sur une transition $i-j$ est proportionnelle à $N_j A_{ij}$. Ce résultat suppose toutefois que l'épaisseur du milieu observé est optiquement faible. En effet la raie émise peut être absorbée par le gaz, c'est le phénomène d'autoabsorption. Si le coefficient d'absorption au centre de la raie est k_0 ,

une épaisseur optiquement faible est telle que $x \ll \frac{1}{k_0}$. Pratiquement, l'intensité émise est mesurée soit par une cellule photoélectrique, soit par photographie, il est donc nécessaire d'obtenir un bon étalonnage de ces instruments par des mesures photométriques (La référence étant un corps noir de température connue).

Il est possible alors sans faire aucune hypothèse sur les densités de population d'obtenir des séries de valeurs relatives de forces d'oscillateur pour des transitions ayant le même niveau supérieur.

Si la durée de vie de ce niveau est connue, les probabilités de transition absolues peuvent être fixées par la condition $\sum_i A_{ij} = \frac{1}{\tau_j}$, si tous les niveaux i ont pu être atteints. En dehors de ces cas très particuliers, pour relier ces séries de valeurs, il est nécessaire de connaître la répartition des densités de population entre les niveaux.

Pour atteindre des transitions entre niveaux élevés il faut réaliser une excitation très forte des atomes, ce qui est obtenu essentiellement par deux méthodes : arc électrique - tube à ondes de choc. Sous certaines conditions, on peut considérer dans ces expériences qu'un équilibre thermique est réalisé, ce qui permet d'obtenir des mesures absolues de forces d'oscillateur. Des mesures assez précises ont ainsi pu être réalisées (54 - 56).

3. Mesures d'absorption.

La lumière absorbée par une vapeur sur une transition dépend de la force d'oscillateur de cette transition, mais par une relation moins simple que dans le cas de l'émission.

Pour une épaisseur ℓ de gaz, éclairé par un faisceau d'intensité $I_0(\nu)$, à la fréquence ν , l'intensité transmise, à la fréquence ν est $I(\nu) = I_0(\nu) e^{-k(\nu)\ell}$. L'analyse spectrale de la courbe d'absorption ne fournit pas $I(\nu)$ mais son produit de convolution par la fonction d'appareil du dispositif d'analyse.

A partir de cette courbe expérimentale, on peut déduire la force d'oscillateur par deux types de méthodes. On reconstitue le profil d'absorption, connaissant la forme des fonctions qui interviennent (profil homogène, répartition Doppler, fonction d'appareil). Les paramètres inconnus sont alors ajustés de manière que courbe expérimentale et courbe théorique coïncident au mieux (57-58). Une autre méthode consiste à étudier la courbe dans son ensemble et à se placer dans des conditions expérimentales telles que des hypothèses simplificatrices puissent être faites lors du dépouillement.

Dans le cas où l'intensité incidente est constante sur une plage de fréquence contenant toute la raie d'absorption, on caractérise l'absorption par la largeur équivalente W définie par :

$$W = \int \frac{I_0(\nu) - I(\nu)}{I_0(\nu)} d\nu = \int (e^{-k(\nu)\ell} - 1) d\nu$$

W est égal à l'aire comprise entre la courbe d'absorption et la droite correspondant au zéro d'absorption, rapportée à l'intensité incidente. Ce rapport est indépendant de la fonction d'appareil du dispositif d'analyse.

Un cas simple est celui de l'absorption faible. Si $k(\nu)\ell$ reste assez petit sur tout le profil, on peut remplacer $e^{-k(\nu)\ell}$ par $1 - k(\nu)\ell$. La largeur équivalente est alors $W = \int \ell k(\nu) d\nu$ c'est-à-dire le coefficient d'absorption totale, qui est proportionnel au produit $N_i f_{ij}$ de la transition.

Dans tous les cas la largeur équivalente W est une fonction du produit $Nf\ell$, de la largeur homogène de la transition, de la distribution de vitesse des atomes absorbeurs. Si l'on suppose que seule la valeur de Nf est inconnue on peut calculer numériquement la variation de W en fonction de Nf (59). On peut se placer dans cette situation en mesurant la largeur homogène de la transition et la distribution de vitesse des atomes absorbeurs par d'autres expériences.

Beaucoup de mesures extensives ont été faites en utilisant des gaz chauffés à haute température : Fours de King (60 - 64) - tuyaux à chaleur (heat-pipe) (65). De telles expériences permettent d'étudier des transitions issues de niveaux très excités et comme la température est élevée le coefficient d'absorption est pratiquement une fonction gaussienne. On suppose que la distribution des populations entre les niveaux suit la loi de Boltzman, ainsi la connaissance de la température d'équilibre permet de déterminer les densités de population des niveaux et les profils d'absorption.

4. Mesures de dispersion.

Des mesures de forces d'oscillateur ont été faites par étude directe de l'indice d'une vapeur. Cependant cette méthode a été peu appliquée car elle n'est précise que si l'indice anormal est très grand. Les mesures de dispersion anormale ont été faites essentiellement par la méthode des crochets que nous décrivons plus en détail dans le chapitre suivant.

5. Conclusion.

La mesure de l'intensité des raies d'émission est une méthode applicable dans de très nombreux cas ; si elle ne conduit pas toujours à des résultats très précis, elle permet d'étudier des transitions issues de niveaux très élevés qui ne pourraient être atteintes ni par absorption, ni par dispersion. Pour des transitions entre niveaux peu excités des expériences ont pu être faites donnant des précisions de l'ordre de 10% .

Pour les méthodes d'absorption, il faut aussi distinguer les études extensives de gaz très excités pour lesquelles il est difficile de réaliser un milieu bien homogène dont les paramètres thermodynamiques soient connus avec précision et les études faites sur des transitions entre niveaux moins excités de l'atome. La difficulté est alors liée aux problèmes posés par les études de profils à haute résolution.

La méthode de dispersion a un domaine d'application plus restreint. En particulier les valeurs de N_f les plus faibles, mesurables par étude de la dispersion anormale, correspondent à des transitions où l'absorption est forte au centre du profil d'absorption. Cependant, la forme de l'indice anormal étant très simple, la mesure de la dispersion anormale peut conduire à des forces d'oscillateur plus précises.

Références

- 1 T. M. HOLZBERLEIN Rev. Sci. Instr. 35 1041 (1964)
- 2 W. R. PENDLETON, R. H. HUGUES Phys. Rev. 138 A683 (1965)
- 3 T. A. ERDMANN, H. FIGGER, H. WALTHER Opt. Comm. 6 166 (1972)
- 4 S. HERON, R. W. P. McWHIRTER, E. H. RHODERICK Nature 174 564 (1964)
- 5 W. R. BENNETT, P. J. KINDLMANN, G. N. MERCER Appl. Opt. Suppl. 2
34 (1965)
- 6 J. Z. KLOZE Phys. Rev. 141 181 (1966)
- 7 G. M. LAWRENCE Phys. Rev. 175 40 (1968)
- 8 H. J. ANDRÄ, A. GAUPP, W. WITTMANN Phys. Rev. Lett. 31 501 (1973)
- 9 E. BRANNEN, F. R. HUNT, R. H. ADLINGTON, R. W. NICHOLLS Nature 175
810 (1955)
- 10 E. SCHATZMAN Ann. Astrophys. 28 111 (1965)
- 11 C. CAMHY, A. M. DUMONT Ann. Astrophys. 28 113 (1965)
- 12 R. D. KAUL J. Opt. Soc. Am. 56 1262 (1966)
- 13 G. H. NUSSBAUM, F. M. PIPKIN Phys. Rev. Lett. 19 1089 (1967)
- 14 R. E. IMHOF, F. H. READ Chem. Phys. Lett. 3 652 (1965)
- 15 A. POCHAT, D. ROZUEL, J. PERESSE J. Phys. 34 701 (1973)
- 16 L. DUNOYER Radium 10 400 (1913)
- 17 H. D. KOENIG, A. ELLETT Phys. Rev. 39 576 (1932)
- 18 L. KAY Phys. Letters 5 36 (1963)
- 19 L. KAY Proc. Phys. Soc. 85 163 (1965)
- 20 S. BASHKIN Nucl. Instr. Methods 28 88 (1964)

- 21 S. BASHKIN Appl. Opt. 7 2341 (1968)
- 22 W. S. BICKEL Appl. Opt. 7 2367 (1968)
- 23 U. FINK Appl. Opt. 7 2373 (1968)
- 24 M. R. LEWIS, F. S. ZIMMOCK, G. W. WARES Phys. Rev. 178 49 (1969)
- 25 J. P. BUCHET, A. DENIS, J. DESEQUELLES, M. DUFAY Phys. Lett. A28
529 (1969)
- 26 L. HEROUX Phys. Rev. 180 1 (1969)
- 27 S. BASHKIN ed. "Beam Foil Spectroscopy" Gordon and Breach -
New York (1968)
- 28 L. HEROUX Appl. Opt. 7 2351 (1968)
- 29 K. ZIOCK Z. Physik 147 99 (1957)
- 30 L. BREWER, C. G. JAMES, R. G. BREWER, F. E. STAFFORD, R. A. BERG,
G. M. ROSENBLATT Rev. Sci. Instr. 33 1450 (1962)
- 31 J. K. LINK J. Opt. Soc. Am. 56 1195 (1966)
- 32 P. T. CUNNINGHAM, J. K. LINK J. Opt. Soc. Am. 57 1000 (1967)
- 33 W. DEMTRÖDER Z. Physik 166 42 (1962)
- 34 G. M. LAWRENCE, B. D. SAVAGE Phys. Rev. 141 67 (1966)
- 35 J. E. HESSER Phys. Rev. 174 68 (1968)
- 36 F. DUSCHINSKY Z. Physik 81 7 (1933)
- 37 P. ERMANN, I. MARTINSON Phys. Scripta 8 269 (1973)
- 38 P. JACQUINOT Rept. Progr. Phys. 23 267 (1960)
- 39 H. G. KUHN, J. M. VAUGHAN Proc. Roy. Soc. (London) A277 297 (1963)
- 40 G. W. SERIES Rept. Progr. Phys. 22 280 (1959)
- 41 J. P. BARRAT J. Phys., Radium 20 657 (1959)
- 42 A. LURIO, R. NOVICK Phys. Rev. 134 A608 (1964)
- 43 G. BREIT Rev. Mod. Phys. 5 91 (1933)

- 44 P. A. FRANKEN Phys. Rev. 121 508 (1958)
- 45 J. BROSSEL, F. BITTER Phys. Rev. 86 308 (1952)
- 46 R. D. COWAN, G. H. DIEKE Rev. Mod. Phys. 20 2 (1948)
- 47 T. HOLSTEIN Phys. Rev. 72 1212 (1947)
- 48 T. HOLSTEIN Phys. Rev. 83 1159 (1951)
- 49 J. P. BARRAT J. Phys. Radium 20 541, 633, 657 (1959)
- 50 M. I. D'YAKONOV, V. I. PEREL Soviet Phys. JETP 20 997 (1965)
- 51 E. A. MILNE J. London Math. Soc. 1 1(1926)
- 52 L. J. CURTIS, R. M. SCHECTMAN, J. L. KOHL, D. A. CHOJNACKI,
D. R. SCHOFFSTALL Nucl. Instr. Meth. 90 207 (1970)
- 53 L. ARMSTRONG, S. FENEUILLE J. Phys. B 8 546 (1975)
- 54 M. H. MILLER, R. A. ROIG, R. D. BENGSTON J. Opt. Soc. Am. 62
1027 (1972)
- 55 M. H. MILLER, R. A. ROIG, R. D. BENGSTON Phys. Rev. A 4 1709 (1971)
- 56 R. D. BENGSTON, M. H. MILLER, D. W. KOOPMAN, T. D. WILKERSON
Phys. Rev. A 3 16 (1971)
- 57 R. ABJEAN, M. LERICHE, A. JOHANNIN-GILLES J. Quant. Spectrosc.
Rad. Transfer 15 15 (1975)
- 58 R. ABJEAN, A. JOHANNIN-GILLES J. Quant. Spectrosc. Rad. Transfer
15 25 (1975)
- 59 K. MIE, J. RICHTER Astron. Astrophys. 25 299 (1973)
- 60 A. S. KING Astrophys. J. 55 380 (1922)
- 61 A. S. KING, R. B. KING Astrophys. J. 87 24 (1938)
- 62 R. B. KING Astrophys. J. 94 27 (1941)
- 63 R. B. KING Astrophys. J. 95 78 (1942)
- 64 R. B. KING Astrophys. J. 105 376 (1947)
- 65 C. R. VIDAL, F. B. HALIER Rev. Sci. Instr. 42 1779 (1971)

CHAPITRE II

Mesure des forces d'oscillateur par étude de la dispersion
anormale au voisinage d'une raie d'absorption.

Méthode des crochets photographique.

I Indice de réfraction au voisinage d'une raie d'absorption.

- 1 Dispersion anormale.
- 2 Calcul de l'indice de réfraction.
- 3 Influence de la largeur homogène. Effets de saturation.
- 4 Influence de l'effet Doppler.
- 5 Principe de la mesure de forces d'oscillateur par étude de
la dispersion anormale.

II Méthode des crochets photographique.

- 1 Dispositif expérimental et principe.
- 2 Conditions d'application et précision.
- 3 Conclusion.

Mesure des forces d'oscillateur par étude de la dispersion anormale
au voisinage d'une raie d'absorption.

Méthode des crochets photographique.

Dans le chapitre précédent, nous avons fait une brève revue des méthodes de mesure de forces d'oscillateur. Comme l'objet de notre travail a été la mise au point de méthodes de mesure de forces d'oscillateur par étude de la dispersion anormale, nous faisons une description plus approfondie des principes de base de ces méthodes. Nous rappelons comment sont liés l'indice de réfraction d'une vapeur au voisinage d'une raie d'absorption et la force d'oscillateur de la transition correspondante et nous précisons les conditions de validité des formules habituellement employées. Enfin nous décrivons la méthode des crochets photographique, qui a été employée avec succès à l'étude de transitions visibles.

I. Indice de réfraction d'une vapeur au voisinage d'une raie
d'absorption.

1. Dispersion anormale.

L'indice de réfraction d'une vapeur est peu différent de 1, sauf au voisinage des raies d'absorption de la vapeur où il varie brutalement et peut prendre des valeurs assez grandes. Ce phénomène est la dispersion anormale. La partie rapidement variable de l'indice dépend de la force d'oscillateur de la transition correspondante. Le principe des méthodes de détermination de forces d'oscillateur par mesure de dispersion anormale est d'étudier cette partie rapidement variable de l'indice de réfraction.

L'indice de réfraction d'une vapeur est donné par la formule de Kramers Heisenberg *

$$n(\sigma) - 1 = \frac{e^2}{2\pi mc^2} \sum_{j>i} (N_i - N_j \frac{g_i}{g_j}) \frac{f_{ij}}{\sigma_{ij}^2 - \sigma^2} .$$

La sommation est faite sur tous les niveaux de l'atome, classés par ordre d'énergies croissantes. N_i est la population du niveau i , g_i sa multiplicité. σ_{ij} est le nombre d'ondes de la transition entre les niveaux i et j , f_{ij} est la force d'oscillateur de cette transition.

* S. Korff, G. Breit, Rev. Mod. Phys. 4 471 (1932).

Cette formule n'est valable que "hors des raies d'absorption" , c'est-à-dire qu'elle ne peut pas être appliquée dans un domaine de quelques largeurs de raie de part et d'autre de chaque raie d'absorption.

Au voisinage d'une raie isolée, il est souvent possible de décrire l'indice par une formule plus simple que la formule de Kramers-Heisenberg. On considérera qu'une raie σ_{ij} est bien isolée s'il existe autour de σ_{ij} un domaine de nombre d'ondes assez important où le terme correspondant à cette transition est prépondérant dans la formule de Kramers-Heisenberg. Il faut pour cela que les transitions σ_{mn} proches de σ_{ij} correspondent à une valeur très faible de $(N_m - N_n \frac{g_m}{g_n}) f_{mn}$ et que pour les autres transitions la condition $(\sigma - \sigma_{mn}) \gg (\sigma - \sigma_{ij})$ soit satisfaite. La contribution à l'indice de réfraction due à ces dernières transitions n'est pas négligeable, mais on peut considérer qu'elle ne varie pratiquement pas avec σ , dans le voisinage de σ_{ij} . On peut alors écrire l'indice de réfraction :

$$n(\sigma) = n_0 + \frac{e^2}{2\pi mc^2} (N_i - N_j \frac{g_i}{g_j}) \frac{f_{ij}}{\sigma_{ij}^2 - \sigma^2}$$

au voisinage de la transition de nombre d'ondes σ_{ij} entre les niveaux i (inférieur) et j (supérieur) .

2. Calcul de l'indice de réfraction.

La formule de Kramers-Heisenberg n'est pas valable pour les nombres d'ondes σ tels que $|\sigma - \sigma_{ij}|$ soit de l'ordre de la largeur homogène γ_{ij} de la transition. Elle représente la forme asymptotique de l'indice de réfraction pour $|\sigma - \sigma_{ij}| \gg \gamma_{ij}$.

Nous présentons en annexe un calcul semi classique de l'indice de réfraction valable pour les faibles valeurs de $|\sigma - \sigma_{ij}|$ qui permet de préciser les conditions de validité de la formule de Kramers-Heisenberg. La vapeur est traitée comme un ensemble de systèmes à deux niveaux, non dégénérés isolés les uns des autres, en interaction avec une onde plane monochromatique non polarisée, à fréquence ω . Dans ces conditions, on obtient les formules suivantes pour l'indice de réfraction et le coefficient d'absorption

$$n = 1 + \frac{4\pi N \omega S_{ij}}{3\pi} \times \frac{\omega_{ij}^2 + \gamma_{ij}^2 - \omega^2 + \frac{E^2 S_{ij} \gamma_{ij}}{3\pi^2 \Gamma_{ij}}}{\left[\omega_{ij}^2 + \gamma_{ij}^2 - \omega^2 + \frac{E^2 S_{ij} \gamma_{ij}}{3\pi^2 \Gamma_{ij}} \right]^2 + \omega^2 \left[2\gamma_{ij} + \frac{E^2 S_{ij}}{3\pi^2 \Gamma_{ij}} \right]^2}$$

$$k = \frac{4\pi N \omega S_{ij}}{3\pi c} \times \frac{\omega^2 \left(2\gamma_{ij} + \frac{E^2 S_{ij}}{3\pi^2 \Gamma_{ij}} \right)}{\left[\omega_{ij}^2 + \gamma_{ij}^2 - \omega^2 + \frac{E^2 S_{ij} \gamma_{ij}}{3\pi^2 \Gamma_{ij}} \right]^2 + \omega^2 \left[2\gamma_{ij} + \frac{E^2 S_{ij}}{3\pi^2 \Gamma_{ij}} \right]^2}$$

$$\pi \omega_{ij} = E_j - E_i = hc \sigma_{ij} \quad \omega = 2\pi c \sigma$$

E est l'amplitude du champ électrique,

S_{ij} est la force de raie de la transition,

γ_{ij} est la constante de relaxation de la cohérence,

$$\Gamma_{ij} = \frac{2\gamma_i\gamma_j}{\gamma_i + \gamma_j} \text{ où } \gamma_i \text{ et } \gamma_j \text{ sont les constantes de relaxation}$$

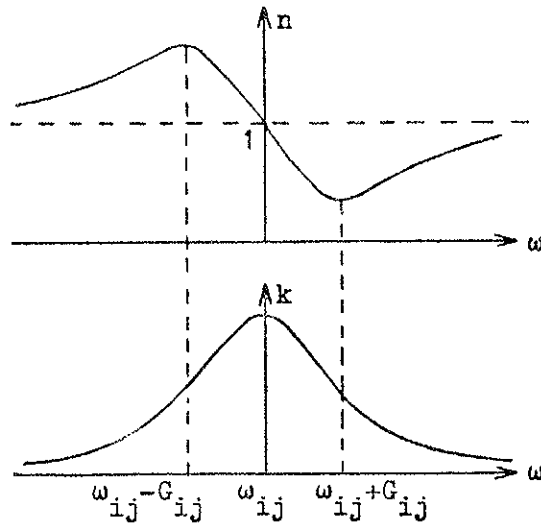
des populations des niveaux i et j ,

$N = N_i - N_j$ où N_i et N_j sont les densités de population des niveaux i et j .

Cette formule suppose les atomes immobiles, nous discuterons donc de l'effet d'une répartition Doppler des vitesses. Nous avons supposé que les niveaux n'étaient pas dégénérés et le champ non polarisé. Si le champ électromagnétique est polarisé, il faut tenir compte de la dégénérescence des niveaux. Considérons par exemple un champ polarisé linéairement, en interaction avec un milieu isotrope. Les états sont caractérisés par $J_i m_i$ et $J_j m_j$. Pour chaque valeur de m une valeur de S_{ij} est introduite. L'indice est la somme des contributions de toutes les valeurs de m . La forme asymptotique est identique à celle obtenue quand on néglige la dégénérescence. Nous discuterons des effets de saturation et de l'effet des collisions sur cette formule approchée.

3. Influence de la largeur homogène - Effets de saturation.

Si nous continuons à considérer les atomes comme immobiles nous pouvons étudier la forme de la courbe d'absorption et de la courbe de dispersion d'après les formules précédentes. La courbe d'absorption



présente un maximum pour $\omega \approx \omega_{ij}$ et sa largeur à mi hauteur est

$$2G_{ij} = 2\left(\gamma_{ij} + \frac{E^2 S_{ij}}{6\hbar^2 \Gamma_{ij}}\right), \text{ c'est la largeur homogène de la transition.}$$

La courbe de dispersion présente un centre de symétrie pour $\omega \approx \omega_{ij}$ et deux extremums pour des valeurs de ω voisines de $\omega_{ij} \pm G_{ij}$.

La forme asymptotique de l'indice pour $|\omega - \omega_{ij}| \gg G_{ij}$ est

$$n - 1 = \frac{e^2 f_{ij}}{2\pi mc^2} \frac{N_i - N_j}{\sigma_{ij}^2 - \omega^2}$$

Nous retrouvons le terme correspondant à la transition $i-j$ qui apparaît dans la formule de Kramers-Heisenberg. Nous voyons ainsi que

la formule de Kramers-Heisenberg ne peut pas s'appliquer dans un domaine de quelques largeurs de raie de part et d'autre de ω_{ij} .

La forme asymptotique de la courbe de dispersion est indépendante de la largeur homogène G_{ij} . La valeur de la largeur homogène définit la région dans laquelle la formule de Kramers-Heisenberg peut être appliquée. Quand la largeur homogène augmente les extremums s'écartent de ω_{ij} et l'amplitude de variation de l'indice entre ces deux points diminue. Nous avons vu que le phénomène de dispersion anormale est la propriété pour l'indice de réfraction de varier brutalement au voisinage d'une raie d'absorption : quand la largeur homogène augmente la dispersion anormale est atténuée.

En première approximation, la largeur homogène G_{ij} est la somme de deux termes : d'une part γ_{ij} qui rend compte de la relaxation des populations des niveaux sous l'effet de l'émission spontanée et des

collisions, d'autre part $\frac{E^2 S_{ij}}{6\hbar^2 \Gamma_{ij}}$ proportionnel à l'intensité du champ

électromagnétique, qui correspond aux effets de saturation. L'effet des collisions et les effets de saturation conduisent à une augmentation de la largeur homogène de la courbe d'absorption et de la courbe de dispersion.

4. Influence de l'effet Doppler.

Le calcul que nous avons fait suppose les atomes immobiles. Si un atome est animé d'une vitesse de composante \vec{v}_κ parallèle à \vec{k} , la fréquence vue par l'atome est $\frac{1}{2\pi}(\omega - \vec{k} \cdot \vec{v}_\kappa)$. Pour un ensemble d'atomes en mouvement l'indice de réfraction est le produit de convolution de l'indice tel que nous l'avons calculé pour un ensemble d'atomes immobiles et de la fonction de répartition des vitesses des atomes. Généralement, cette fonction ne prend des valeurs importantes que dans un domaine très limité et on peut l'assimiler à une fonction à support borné. La forme asymptotique de l'indice de réfraction est une fonction à variation lente. C'est pourquoi la forme asymptotique de l'indice de réfraction est la même pour un ensemble d'atomes en mouvement et pour un ensemble d'atomes immobiles. Dans un gaz la fonction de répartition des vitesses est le plus souvent une gaussienne. Dans ce cas la courbe de dispersion a un centre de symétrie pour $\omega \simeq \omega_{ij}$ et présente deux extremums symétriques par rapport à ω_{ij} . La forme asymptotique est identique à celle que nous avons calculée pour des atomes immobiles. Pour déterminer le domaine dans lequel la formule de Kramers-Heisenberg ne peut s'appliquer il faut tenir compte des mêmes paramètres que précédemment et de la largeur Doppler (largeur de la distribution des vitesses en unités de $k v_\kappa$).

5. Principe de la mesure des forces d'oscillateur par étude de la dispersion anormale.

Nous avons montré dans les paragraphes précédents que pour une raie σ_0 bien isolée il existe un domaine au voisinage de cette raie où l'indice peut s'écrire :

$$n = n_0 + \frac{e^2}{2\pi mc^2} (N_i - N_j) \frac{g_i}{g_j} \frac{f_{ij}}{\sigma_0^2 - \sigma^2} .$$

Si nous limitons encore ce domaine de manière que soit réalisée la condition $|\sigma_0 - \sigma| \ll \sigma$ on peut confondre σ et σ_0 quand ils apparaissent comme facteurs multiplicatifs, ce qui conduit aux formules simplifiées suivantes utilisées dans les méthodes de mesure de forces d'oscillateur par étude de la dispersion anormale .

$$n(\lambda) = n_0 + \frac{e^2}{4\pi mc^2} (N_i - N_j) \frac{g_i}{g_j} \frac{f_{ij} \lambda_0^3}{\lambda - \lambda_0}$$

$$n(\sigma) = n_0 + \frac{e^2}{4\pi mc^2} (N_i - N_j) \frac{g_i}{g_j} \frac{f_{ij}}{\sigma(\sigma_0 - \sigma)} .$$

[Le premier terme négligé est du premier ordre en $\frac{\sigma - \sigma_0}{\sigma_0}$ cependant dans la méthode des crochets que nous décrivons plus loin, cette simplification nous conduit à négliger dans la détermination de la force d'oscillateur d'une transition, un terme du second ordre seulement en $\frac{\sigma - \sigma_0}{\sigma_0}$] .

Ces formules représentent la forme asymptotique de l'indice de réfraction qui, comme nous l'avons vu, est indépendante de la largeur

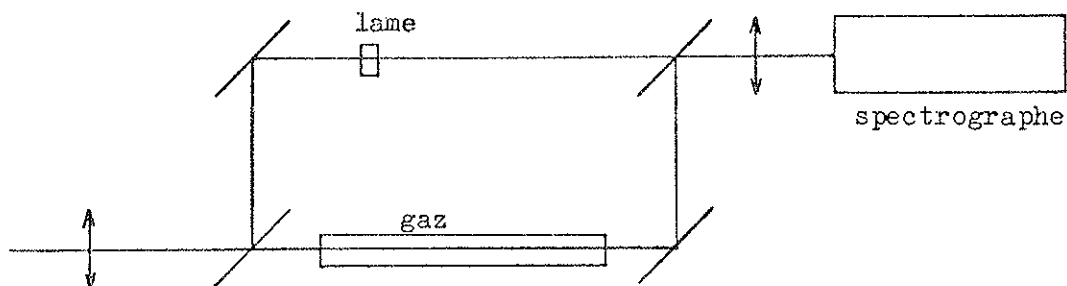
homogène et de la largeur Doppler de la transition. Il est préférable de connaître approximativement ces largeurs pour déterminer le domaine de nombre d'ondes où cette formule est applicable avec la précision voulue, mais ce n'est pas indispensable. D'autre part, les divers phénomènes qui perturbent la largeur homogène et plus généralement le profil des raies d'absorption ou d'émission, n'a aucune influence sur la forme asymptotique de l'indice de réfraction. Ainsi les résultats obtenus par les méthodes de mesure de force d'oscillateur par étude de l'indice de réfraction au voisinage d'une raie d'absorption présentent moins de difficultés d'interprétation que dans la plupart des autres méthodes de mesure de force d'oscillateur.

II. Méthode des crochets photographique.

Cette méthode a été proposée pour la première fois par Rozhdestvenskii * en 1912. Le principe en est simple et la réalisation ne nécessite pas d'instrument de mesure à très haute résolution. Elle consiste à observer avec un spectrographe les franges d'interférence données par un interféromètre à deux ondes, éclairé en lumière blanche, dont l'un des bras contient une vapeur. Les références des études faites avant 1967 sont données par Marlow dans un article de revue sur la méthode des crochets **. Nous allons exposer le principe de cette méthode et discuter ses limitations.

1. Dispositif expérimental et principe.

L'interféromètre utilisé est du type Jamin ou Mach Zehnder. Les bras sont de longueurs différentes (ceci est obtenu soit par inclinaison



* D. S. Rozhdestvenskii, Ann. Physik. 39 307 (1912).

** W. C. Marlow, Appl. Opt. 6 1715 (1967).

des miroirs, soit par interposition d'une lame dans un bras de l'interféromètre). La cuve est placée dans le bras le plus court. L'interféromètre est éclairé par une source blanche placée au foyer d'une lentille. On forme des franges de coin d'air qui sont projetées sur la fente d'entrée d'un spectromètre, les franges étant perpendiculaires à la fente. Quel que soit le détail du montage, les conditions sont choisies de manière que l'état d'interférence à une hauteur y de la fente corresponde à une différence de chemin optique δ entre les deux ondes qui interfèrent

$$\delta = (n(\sigma) - 1)\ell - x + \alpha y \quad ,$$

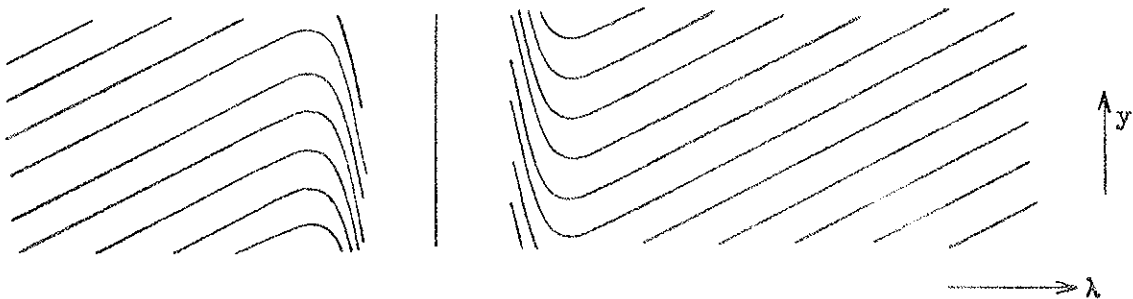
$n(\sigma)$ indice de la vapeur,

ℓ longueur de la cuve,

x différence de longueur entre les deux bras, qui est comptée positivement si la cuve est dans le bras le plus court,

α angle du coin d'air.

On obtient sur une plaque photographique un réseau de courbes.



Chaque courbe correspond à un même ordre d'interférence. L'équation d'une courbe est de la forme

$$(n(\lambda) - 1)\ell - x + \alpha y = k\lambda$$

k étant l'ordre d'interférence.

Chacune de ces courbes présente deux extremums, appelés crochets, pour les longueurs d'onde telles que $\ell \frac{dn}{d\lambda} = k$. Dans les conditions habituelles, l'ordre d'interférence est élevé et on le mesure en étudiant les courbes dans leur partie rectiligne, hors de la raie d'absorption. A y donné, considérons deux longueurs d'onde λ' et $\lambda' + \Delta\lambda'$ pour lesquelles l'ordre d'interférence est k et $k+p$ et appliquons la relation précédente :

$$(n(\lambda') - 1)\ell - x + \alpha y = \lambda'k$$

$$(n(\lambda' + \Delta\lambda') - 1)\ell - x + \alpha y = (\lambda' + \Delta\lambda')(k+p)$$

$$n(\lambda' + \Delta\lambda') \approx n(\lambda') \quad k \gg p \quad \text{et} \quad \Delta\lambda' \ll \lambda' \quad \text{donc} \quad k = -\frac{p\lambda'}{\Delta\lambda'} = -K$$

$-K$ est une valeur moyenne de l'ordre d'interférence au voisinage de la raie d'absorption et $K > 0$.

D'après la formule simplifiée établie précédemment

$$\frac{dn}{d\lambda} = -\frac{e^2}{4\pi mc^2} (N_i - N_j) \frac{g_i}{g_j} \frac{f_{ij} \lambda_0^3}{(\lambda - \lambda_0)^2}$$

Les extremums se produisent pour λ^+ et λ^- donnés par

$$(\lambda - \lambda_0)^2 = \frac{e^2}{4\pi mc^2} (N_i - N_j) \frac{g_i}{g_j} \frac{f_{ij} \lambda_0^3 \ell}{K}$$

Soit $\Delta = \lambda^+ - \lambda^-$ la distance entre les extremums, on en déduit :

$$(N_i - N_j \frac{g_i}{g_j}) f_{ij} = \frac{\pi m c^2}{e^2} \frac{\Delta^2 K}{\lambda_0^3 \ell} .$$

On se place généralement dans le cas où le niveau inférieur de la transition est beaucoup plus peuplé que le niveau supérieur, c'est-à-dire quand $N_i \gg N_j \frac{g_i}{g_j}$. Une mesure permet alors de déterminer $N_i f_{ij}$. S'il est possible de mesurer la densité de population du niveau i , on peut obtenir la valeur de f_{ij} , sinon on peut, en étudiant plusieurs transitions de même niveau inférieur i , obtenir une série de valeurs relatives de forces d'oscillateurs.

2. Conditions d'application et précision.

Cette méthode a été appliquée de manière extensive par Rozhdestvenskii, Penkin et leurs collaborateurs à l'étude de vapeurs métalliques. Les transitions étudiées sont issues de niveaux inférieurs très peuplés (densité $\geq 10^{12}$ atomes/cm³). Les auteurs obtiennent ainsi des mesures relatives de forces d'oscillateur avec une bonne précision (incertitude $\leq 5\%$). Les résultats sont généralement en bon accord avec les mesures obtenues par d'autres méthodes (voir par exemple *). Cependant aucune description précise de la méthode de dépouillement des plaques n'est donnée et la précision n'est pas discutée.

* Yu. I. Ostrovskii, N. P. Penkin, p. 422 in Optical Transition Probabilities ed. par Meroz.

Le dépouillement consiste tout d'abord à mesurer K en comptant le nombre de franges apparues entre λ et $\lambda + \Delta\lambda$, ensuite à mesurer Δ , distance entre les extremums des courbes. Ces courbes sont des portions d'hyperboles dont l'aspect varie en fonction des paramètres géométriques du montage, c'est-à-dire en fonction de K . Quand K augmente, $\Delta^2 K$ reste constant, les courbes sont plus inclinées (dans leur partie rectiligne) et plus serrées, les crochets sont plus proches de la raie d'absorption. Au voisinage des extremums les courbes sont dissymétriques et ce d'autant plus que K est grand, mais alors la concavité est plus grande et les extremums sont plus prononcés. Quand les raies voisines sont assez proches, il est nécessaire de former les crochets près de la raie d'absorption pour être assurés que la formule simplifiée prise pour l'indice de la vapeur s'applique avec la précision voulue ; pour une raie bien isolée, le choix de K est moins critique. Il ne semble pas que les auteurs aient utilisé le fait que les courbes sont des hyperboles pour déterminer les extremums. Une discussion sommaire est donnée par Kvater * qui fait des mesures en faisant systématiquement varier K et donc la position des crochets en vue de vérifier la validité de la formule de Kramers-Heisenberg et de la méthode des crochets ; il fait allusion à la difficulté qu'il y a à pointer le maximum d'une courbe dissymétrique.

* G. S. Kvater dans Optical Transition Probabilities, ed. par Meroz, p. 142.

Dans le cas où les crochets sont proches de la raie d'absorption, une résolution trop faible peut conduire à des courbes dont le contraste n'est pas très bon mais surtout dont la forme est altérée, la distance entre les crochets est alors surestimée. Ceci semble être souvent la source de désaccords systématiques apparaissant avec des mesures faites par d'autres méthodes.

3. Conclusion.

La méthode des crochets peut être facilement appliquée dans tous les cas où les niveaux inférieurs des transitions peuvent être suffisamment peuplés. Ces mesures ne nécessitent pas de connaissance précise des formes de raies et ne sont donc pas sensibles aux phénomènes parasites qui interviennent dans les méthodes d'émission ou d'absorption.

Pour obtenir des résultats précis par cette méthode, il faut que la figure d'interférence photographiée ait un bon contraste et donc que l'interféromètre soit bien stable, cependant si la photographie peut être faite en un temps assez bref, ce problème n'est plus aussi crucial. Même si le contraste des franges est très bon, du fait même de leur structure sinusoïdale, elles ont une "largeur" qui est une limitation fondamentale. C'est en vue de résoudre ce problème que d'autres montages interférométriques ont été proposés (interféromètres à ondes multiples où la finesse des franges d'interférence est plus grande que 2).

Plus graves sont les limitations liées à l'utilisation d'une plaque photographique et c'est pour cette raison que la méthode des crochets n'avait pu être appliquée à l'étude des transitions infrarouges. Une solution naturelle à ce problème consistait à imaginer une version photoélectrique de la méthode. C'est là l'objet essentiel de notre travail que nous décrivons dans le chapitre suivant.

CHAPITRE III

Deux méthodes photoélectriques de mesure des forces
d'oscillateur par étude de la dispersion anormale
au voisinage d'une raie d'absorption.

I. Introduction.II. Méthode des crochets photoélectrique.

1. Principe.
- 2 Difficultés expérimentales.
- 3 Conditions de mesure - Précision.
- 4 Comparaison avec la méthode photographique.

III. Mesure de forces d'oscillateur de transitions infrarouges.

- 1 Introduction.
- 2 Indice de réfraction le long de la bande 2-0 de CO .
- 3 Application de la méthode des crochets photoélectrique à
l'étude de la bande 2-0 de CO .
- 4 Conclusion.

IV. Utilisation d'un laser monomode accordable.

- 1 Introduction.
- 2 Dispositif expérimental - principe.
- 3 Description des courbes obtenues.
- 4 Précision des mesures. Valeurs accessibles à la mesure.
- 5 Conclusion.

V. Comparaison avec d'autres méthodes photoélectriques de mesure de l'indice de réfraction.

- 1 Mesure directe.
- 2 Spectroscopie d'amplitude.

I. Introduction.

Comme la description de la méthode des crochets photographique faite dans le chapitre précédent le montre, la mesure des forces d'oscillateur par étude de la dispersion anormale est une méthode dont le principe est très simple. En effet elle évite beaucoup des problèmes rencontrés dans les mesures d'émission ou d'absorption - problèmes liés aux profils en particulier. Cependant cette méthode suppose l'emploi de plaques photographiques, ce qui limite son domaine d'application aux raies visibles et ultraviolettes. Les nombreux progrès faits récemment dans l'étude des transitions infrarouges sont dus à l'existence de détecteurs photoélectriques sensibles dans cette région spectrale. Il nous a semblé que le meilleur moyen de transposer la méthode des crochets photographique à l'étude des transitions infrarouges était de mettre au point une méthode fondée sur les mêmes principes mais où le détecteur serait une cellule photoélectrique et non une plaque photographique. De la méthode des crochets nous avons conservé ce principe qui est de comparer par une méthode interférométrique la variation d'indice d'une vapeur avec les caractéristiques géométriques d'un interféromètre.

Avant d'expliquer comment cette transposition est possible, il nous faut tout d'abord revenir à une comparaison plus générale de ces deux types de détecteurs que sont la plaque photographique et le détecteur photoélectrique. La plaque photographique peut être considérée

comme un ensemble de petits détecteurs photosensibles disposés sur toute la surface de la plaque, chacun de ces récepteurs étant capable d'enregistrer un flux avec une échelle d'intensité très peu précise et en tout cas de dynamique assez faible. L'utilisation d'une plaque photographique consiste à étudier le noircissement de la plaque pour déterminer l'éclairement qui l'a provoqué. Pour chaque plaque il existe un domaine d'éclairement pour lequel la densité de la plaque est une fonction linéaire du logarithme de l'éclairement ; ce domaine correspond à une variation d'éclairement dans un rapport 1 à 20 environ. Pour être dans de bonnes conditions de rapport signal sur bruit, il est indispensable de se placer dans ce domaine, on ne peut donc pas étudier dans de bonnes conditions avec une plaque photographique, une répartition d'intensité présentant un contraste plus important. Une plaque photographique enregistre une image à deux dimensions, c'est-à-dire une répartition d'intensité, mais elle ne permet pas d'enregistrer l'évolution de cette répartition à moins qu'on utilise des bandes successives de la plaque. Les détecteurs photoélectriques sont, au contraire, capables d'enregistrer un flux avec une échelle linéaire et une grande dynamique et on peut enregistrer l'évolution, dans le temps, de l'éclairement.

Dans d'autres expériences, la transposition a été faite de l'utilisation d'une plaque photographique à l'utilisation d'un détecteur photoélectrique. Le problème est très simple quand la propriété de la plaque photographique de recueillir une image à deux dimensions n'est pas utilisée. Dans la mesure des longueurs d'onde par exemple,

sur une plaque photographique, la longueur d'onde des raies enregistrées est une fonction connue de l'abscisse sur la plaque et, pour une mesure photoélectrique, on provoque un défilement des radiations devant le récepteur photoélectrique, la longueur d'onde étant une fonction connue du temps. Nous avons cherché à modifier le montage de la méthode des crochets photographique de manière à nous placer dans une situation comparable.

Nous avons, dans le chapitre précédent, décrit l'aspect des plaques obtenues par la méthode des crochets. L'éclairement est proportionnel à $1 + \cos 2\pi p$, p est l'ordre d'interférence, lié à la longueur d'onde λ et à la position y par rapport à la fente par la relation $(n(\lambda) - 1)\ell - x + \alpha y = p\lambda$. L'éclairement de la plaque sur la droite correspondant à un point de la fente du spectromètre (y constant) est une fonction sinusoidale du nombre d'ondes loin d'une raie d'absorption et présente un extremum pour chacun des deux nombres d'ondes correspondant à la position des crochets qu'on observe de part et d'autre d'une raie d'absorption. C'est ce type d'extremums que nous avons mis en évidence et étudiés pour mesurer des forces d'oscillateur.

Sur les plaques obtenues avec le montage classique une telle étude est impossible, car on serait amené à étudier une bande très étroite de la plaque correspondant à un même point de la fente d'entrée du spectromètre ; ceci est dû au fait que, pour une longueur d'onde, l'ordre d'interférence varie de plusieurs unités d'un bord à l'autre de la plaque. En revanche, si on modifie le montage de manière à projeter

sur la fente d'entrée d'un monochromateur, non pas des franges mais une teinte plate, les courbes présentant des crochets n'apparaîtront plus mais l'éclairement de la plaque ne sera plus qu'une fonction des abscisses. Ce sont les conditions pour lesquelles la transposition de l'utilisation de la plaque photographique à l'utilisation d'un récepteur photoélectrique se fait de manière très simple. C'est en ce sens que nous avons modifié le montage classique de la méthode des crochets. Cette modification nous a permis de mettre au point une méthode applicable à l'étude des transitions infrarouges et même dans le domaine visible nous avons pu faire des mesures plus précises que celles obtenues par la méthode photographique. On verra que la précision est essentiellement limitée par la largeur de la fonction d'appareil du spectromètre. Dans une seconde méthode, afin de nous affranchir de cette limitation, nous avons utilisé un laser à colorant monomode accordable dont la largeur spectrale est très faible et la fréquence définie avec beaucoup de précision. Nous avons modifié la méthode photoélectrique de manière à l'adapter aux caractéristiques particulières d'un laser à colorant. Nous n'avons fait avec cette dernière méthode que des mesures préliminaires et la précision qu'elle permet d'atteindre peut encore être augmentée. Nous décrivons ces deux méthodes dans les paragraphes suivants.

II. Méthode des crochets photoélectrique.

Le dispositif expérimental que nous avons utilisé est décrit dans les articles placés en annexe ; nous rappellerons ici le principe de la méthode et les principales difficultés que nous avons eu à surmonter.

1. Principe.

L'appareil est constitué d'un interféromètre de Michelson, d'un spectromètre et d'un dispositif de détection (cf. 1^{er} article en annexe).

L'interféromètre est éclairé par une source blanche placée au foyer d'une lentille. Un des bras contient la vapeur à étudier. L'interféromètre est réglé de manière à former des anneaux à l'infini dont le centre est projeté sur la fente d'entrée d'un monochromateur à réseau. Un photomultiplicateur est placé derrière la fente de sortie du monochromateur. Quand on fait tourner le réseau, le photomultiplicateur fournit un signal proportionnel à la transmission de l'interféromètre, auquel se superposent les raies émises par le gaz étudié.

La différence de chemin optique entre les deux ondes qui interfèrent est $\Delta = (n(\sigma) - 1)l - x_0$

$n(\sigma)$ est l'indice de la vapeur pour le nombre d'onde σ ,

$\frac{l}{2}$ est la longueur du tube,

$\frac{x_0}{2}$ est la différence de longueur géométrique entre les deux bras de l'interféromètre.

La transmission de l'interféromètre est proportionnelle à

$T = 1 + \cos 2\pi\sigma\Delta$ soit, en utilisant dans cette expression la formule approchée de l'indice de réfraction que nous avons établie,

$$n(\sigma) = n_0 + \frac{A}{\sigma(\sigma_0 - \sigma)}$$

$$T = 1 + \cos 2\pi\left[\sigma x + \frac{A}{\sigma - \sigma_0}\right]$$

avec $x = x_0 - (n_0 - 1)\ell$ et $A = \frac{Ne^2 f \ell}{4\pi mc^2}$.

Cette fonction présente des extrémums à chaque fois que $2\sigma\Delta$ est entier et également quand $\frac{d}{d\sigma}\left(\sigma x + \frac{A}{\sigma - \sigma_0}\right)$ s'annule, c'est-à-dire pour deux valeurs de σ symétriques par rapport à σ_0 données par

$$(\sigma - \sigma_0)^2 = \frac{A}{x}.$$

Loin d'une raie d'absorption la fonction est sinusoïdale, de période $\frac{1}{x}$.

Sur la courbe obtenue de la transmission de l'interféromètre en fonction du nombre d'ondes, on mesure la période des franges non perturbées et la distance des extrémums, ce qui permet de déterminer la valeur de $N_i f_{ij}$ pour la transition $\sigma_0 = \sigma_{ij}$ étudiée.

La détermination de x est analogue à la détermination de K dans la méthode des crochets photographique (voir chapitre précédent) et les extrémums sont l'analogue des crochets.

2. Difficultés expérimentales.

Elles résident essentiellement dans le problème de la stabilité de l'interféromètre. Si les instabilités à court terme se traduisent par un bruit sur le signal enregistré, les dérives lentes ne peuvent être détectées sur un enregistrement et peuvent cependant conduire à des figures très déformées (la période des franges sinusoïdales peut par exemple être différente de $\frac{1}{x}$). Pour résoudre ce problème nous avons réalisé un asservissement de la différence de marche de l'interféromètre. Le faisceau issu d'un laser He-Ne à $6\ 328\ \overset{\circ}{\text{Å}}$ traverse l'interféromètre et l'état d'interférence du faisceau émergent sert de référence à un dispositif électronique qui corrige les variations de chemin optique en ajustant la position d'un des miroirs de l'interféromètre. Ce miroir est monté sur une céramique piézo-électrique à laquelle on applique une tension alternative à 800 Hz. Le signal d'erreur de l'asservissement est fourni par la partie alternative du signal dû au faisceau à $6\ 328\ \overset{\circ}{\text{Å}}$.

La différence de marche dans l'interféromètre étant modulée, la transmission de l'interféromètre est modulée. On extrait par un traitement électronique la partie modulée du signal fourni par le photomultiplicateur, elle est proportionnelle à $\sin 2\pi\sigma\Delta$ quand la transmission de l'interféromètre est proportionnelle à $1 + \cos 2\pi\sigma\Delta$. Les raies émises par le gaz, non modulées, sont ainsi éliminées.

L'interféromètre est éclairé en lumière blanche, mais nous n'étudions que le voisinage de chaque raie d'absorption et il suffit donc

d'un spectre d'intensité constante sur quelques dizaines d'Angström autour de chacune des raies étudiées. De manière à ne pas être gênés par le recouvrement d'ordre dans le monochromateur, nous avons utilisé un ensemble de filtres interférentiels de largeur 200 à 300 Å, dont la transmission est à peu près constante pour toute la partie du spectre étudiée.

Les problèmes que nous venons d'évoquer sont liés à la méthode et ont la même solution quel que soit le corps étudié, mais dans chaque cas particulier on doit étudier les conditions d'excitation du milieu dans lesquelles l'étude de la dispersion anormale est possible et conduit effectivement à la mesure des forces d'oscillateur des transitions. Nous avons vu que la mesure faite sur une transition $i-j$ permet de déterminer la quantité $(N_i - N_j \frac{g_i}{g_j}) f_{ij}$. Nous ne pouvons obtenir les valeurs des forces d'oscillateur relatives que si, pour chaque transition étudiée, la condition $N_i \gg N_j \frac{g_i}{g_j}$ est satisfaite ; nous devons nous en assurer dans chaque cas. D'autre part, la mesure est d'autant plus facile et précise que N_i est plus grand. Pour chaque corps, il faut donc chercher les meilleures conditions d'excitation du milieu, c'est-à-dire tenter d'obtenir les valeurs les plus grandes possibles de N_i compatibles avec la condition $N_i \gg N_j \frac{g_i}{g_j}$. Ces contraintes peuvent se révéler contradictoires ; en effet, dans le Néon I par exemple, le gaz est excité par une décharge continue ; quand on augmente l'intensité du courant qui traverse le tube, les populations des niveaux $2p^5 3p$ augmentent plus vite que les populations des niveaux $2p^5 3s$ sans qu'il y ait toutefois inversion de population. Nous nous sommes assurés

que la condition $N_i \gg N_j \frac{g_i}{g_j}$ était satisfaite en étudiant les valeurs des rapports $\frac{f_{ij}}{f_{ik}}$ quand les populations varient.

3. Conditions de mesure - Précision.

Forme des courbes.

Les courbes peuvent être représentées par la fonction :

$$y = y_0 \sin 2\pi\left(\sigma x + \frac{A}{\sigma - \sigma_0}\right) \quad (\text{cf. } \S.1) \quad .$$

Pour deux points d'abscisses σ_1 et σ_2 , du même côté de σ_0 , de part et d'autre d'un extremum, correspondant à une même valeur de y , nous pouvons écrire :

$$\sin 2\pi\left(\sigma_1 x + \frac{A}{\sigma_1 - \sigma_0}\right) = \sin 2\pi\left(\sigma_2 x + \frac{A}{\sigma_2 - \sigma_0}\right)$$

soit
$$\sigma_1 x + \frac{A}{\sigma_1 - \sigma_0} = \sigma_2 x + \frac{A}{\sigma_2 - \sigma_0}$$

$$(\sigma_2 - \sigma_0)(\sigma_1 - \sigma_0) = \frac{A}{x} \quad .$$

Pour déterminer la position d'un extremum nous choisissons des couples de points σ_1, σ_2 comme nous venons de les décrire et pour chaque couple nous calculons le produit $(\sigma_2 - \sigma_0)(\sigma_1 - \sigma_0)$. Ces points sont déterminés de façon précise si la valeur du sinus est proche de zéro.

La valeur du sinus à l'extremum dépend de la différence de longueur entre les deux bras de l'interféromètre par le facteur σx on voit donc qu'une très faible variation de x peut conduire à une grande variation de la phase du sinus à l'extremum. Le système d'asservis-

sement permet de faire varier la longueur d'un bras de l'interféromètre par pas de $6\,328\text{ \AA}$ faisant ainsi varier la phase de l'extremum de $2\pi + 2\pi\Delta\sigma \times 6328$; on peut ainsi ajuster la valeur de la phase à l'extremum sans changer l'ordre de grandeur de x . On se place ainsi dans des conditions telles que les couples de points (σ_1, σ_2) correspondent à des valeurs du sinus comprises entre $-\frac{1}{2}$ et $\frac{1}{2}$, la forme de la courbe obtenue n'est alors pas très différente de

$$z = (\sigma - \sigma_0)x + \frac{A}{\sigma - \sigma_0}$$

à une translation près des ordonnées.

Le bruit qui affecte les courbes a deux origines :

a) bruit de photons, proportionnel à la racine carrée de l'intensité lumineuse reçue par le photomultiplicateur (La résolution du monochromateur étant choisie, celle-ci dépend de la luminosité du monochromateur et de la brillance de la lampe blanche).

b) instabilités de l'interféromètre qui se traduisent par une instabilité de la phase du sinus. Le bruit obtenu sur les courbes n'est pas le même suivant la valeur du sinus, cependant il reste du même ordre sur la partie utile des courbes (sinus compris entre $-\frac{1}{2}$ et $\frac{1}{2}$).

Nous supposons donc que la courbe est définie avec une incertitude Δz sur l'ordonnée z d'un point, Δz étant constant pour les points que nous considérerons. L'abscisse σ d'un point d'ordonnée z est définie avec une incertitude $\Delta\sigma$ telle que $\frac{\Delta z}{\Delta\sigma} = \left| \frac{dz}{d\sigma} \right|$.

Précision des mesures.

Nous allons calculer la précision sur la valeur de A déterminée à l'aide d'un couple de points $\sigma_1 \sigma_2$ tels que $(\sigma_1 - \sigma_0)(\sigma_2 - \sigma_0) = \frac{A}{x}$.

$$\frac{\Delta A}{A} = \frac{\Delta \sigma_1}{|\sigma_1 - \sigma_0|} + \frac{\Delta \sigma_2}{|\sigma_2 - \sigma_0|} + \Delta \sigma_0 \left(\frac{1}{|\sigma_1 - \sigma_0|} + \frac{1}{|\sigma_2 - \sigma_0|} \right) + \frac{\Delta x}{x}.$$

Supposons que la disposition des points est choisie de manière que

$$\sigma_0 < \sigma_1 < \sigma_2$$

$$\left| \frac{dz}{d\sigma_1} \right| = \frac{A}{(\sigma_1 - \sigma_0)^2} - x \quad \left| \frac{dz}{d\sigma_2} \right| = x - \frac{A}{(\sigma_2 - \sigma_0)^2}$$

$$\frac{\Delta \sigma_1}{|\sigma_1 - \sigma_0|} = \frac{\Delta \sigma_2}{|\sigma_2 - \sigma_0|} = \frac{\Delta z}{\frac{A}{\sigma_1 - \sigma_0} - x(\sigma_1 - \sigma_0)}.$$

L'incertitude sur σ_0 est très faible et nous la négligerons.

Pour mesurer x on compte une ou plusieurs franges entre deux points pour lesquels le sinus est nul. En ces points la pente est au moins égale à la pente au point σ_2 et la distance mesurée est supérieure à $\sigma_2 - \sigma_0$, puisqu'on utilise une région qui contient l'ensemble des deux crochets, donc on a toujours $\frac{\Delta x}{x} < \frac{\Delta \sigma_2}{\sigma_2 - \sigma_0}$.

L'incertitude sur la mesure de A est donc au plus $\frac{3\Delta \sigma_1}{|\sigma_1 - \sigma_0|}$.

Voyons comment varie cette quantité suivant les valeurs de x et de

σ_1 choisies

$$\frac{\Delta \sigma_1}{|\sigma_1 - \sigma_0|} = \frac{\Delta z}{\frac{A}{\sigma_1 - \sigma_0} - x(\sigma_1 - \sigma_0)}.$$

En étudiant les variations de cette fonction pour $0 < \sigma_1 - \sigma_0 < \frac{\Lambda}{x}$ on voit que pour obtenir une détermination précise de Λ il faut choisir x petit et σ_1 très proche de σ_0 .

En choisissant x et σ_1 nous devons veiller à ce que les points utilisés se trouvent dans un domaine de longueur d'onde où la formule simplifiée que nous avons établie pour l'indice s'applique. Les points utilisés ne doivent pas être trop loin de la raie, sinon elle ne peut plus être considérée comme isolée, ils ne doivent pas non plus être trop proches du centre de la raie d'absorption, sinon la forme hyperbolique de l'indice n'est plus correcte. La zone utilisable sera déterminée dans chaque cas particulier, connaissant la position des raies voisines et l'ordre de grandeur de la dispersion qu'elles créent, la largeur approximative de la raie étudiée et la résolution avec laquelle le spectre cannelé est analysé (Nous avons montré comment les courbes peuvent être déformées si la résolution est insuffisante. cf. 1er article en annexe).

En pratique nous avons utilisé plusieurs couples de points pour déterminer la position d'un extremum dans une région où la pente de la courbe est grande.

$$\text{D'après la formule } \frac{\Delta\sigma_1}{|\sigma_1 - \sigma_0|} = \frac{\Delta z}{\frac{\Lambda}{\sigma_1 - \sigma_0} - x(\sigma_1 - \sigma_0)} \quad \text{on voit que}$$

la précision maximale qui puisse être atteinte correspond à

$$\left(\frac{\Delta\Lambda}{\Lambda}\right)_{\min.} = 3 \frac{\Delta z}{\Lambda} (\sigma_1 - \sigma_0) \quad \text{donc} \quad (\Delta\Lambda)_{\min.} = 3(\sigma_1 - \sigma_0)\Delta z \quad .$$

Δz est l'incertitude avec laquelle la courbe enregistrée est connue, on peut l'exprimer en fonction du rapport signal sur bruit $\frac{S}{B}$. Dans la région utile $y \simeq 2\pi z$ donc $\Delta y = 2\pi\Delta z$ $\frac{S}{B} = \frac{2}{\Delta y}$ (le sinus varie entre -1 et 1). $\Delta z = \frac{1}{\pi} \frac{B}{S}$ donc

$$(\Delta A)_{\min.} = \frac{3}{\pi} (\sigma_1 - \sigma_0) \frac{B}{S} .$$

Cette formule détermine aussi la valeur la plus faible de A qui peut être mesurée, pour des conditions de précision choisies, en remplaçant $\sigma_1 - \sigma_0$ par la plus faible distance acceptable compte tenu de la résolution et de la largeur des raies étudiées. Pour un rapport signal sur bruit de 100, si la plus faible valeur de $\sigma_1 - \sigma_0$ acceptable est d'environ 100 mK (c'est le cas des transitions du Néon que nous avons étudiées), la plus faible valeur de A détectable sera de 10^{-3} cm^{-1} ce qui correspond à une valeur de Nf de $5 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$; on pourra mesurer avec une incertitude de 5% des valeurs de Nf de 10^{10} cm^{-3} (x étant de l'ordre d'une fraction de mm.).

4. Comparaison avec la méthode photographique.

On peut passer facilement de l'un des dispositifs expérimentaux à l'autre. Dans la méthode photographique l'interféromètre est réglé de manière à produire des franges de coin d'air; en diminuant l'angle du coin d'air, on élargit une des franges jusqu'à obtenir une teinte plate. L'intensité lumineuse reçue sur la plaque photographique, correspondant à un même point de la fente d'entrée du monochromateur,

c'est-à-dire sur une droite parallèle à la dispersion, est proportionnelle à la transmission de l'interféromètre réglé à la teinte plate correspondant au même ordre d'interférence. Ainsi, en étudiant le noircissement des plaques photographiques sur des droites parallèles à la dispersion on obtiendrait des courbes analogues à celles que nous obtenons dans la méthode photoélectrique (en supposant linéaire la caractéristique de la plaque).

Les courbes que nous enregistrons peuvent être représentées, dans les conditions que nous avons décrites précédemment, par :

$$z = \sigma x + \frac{Ne^2 f \ell}{4\pi mc^2 (\sigma - \sigma_0)}$$

$z = \sigma \Delta$ est l'ordre d'interférence.

Les franges observées sur les plaques photographiques ont pour équation :

$$y = \frac{1}{\alpha} \left(k\lambda - \frac{Ne^2 f \ell}{4\pi mc^2} \frac{\lambda_0^3}{\lambda - \lambda_0} + \Delta \ell \right)$$

y est l'ordonnée d'un point sur la plaque, son abscisse étant λ .

Les deux sortes de courbes observées ont des équations analogues l'une en σ , l'autre en λ . Ceci tient au fait que, dans le petit domaine de longueur d'onde où se produisent les phénomènes étudiés, la condition $|\sigma - \sigma_0| \ll \sigma$ reste vérifiée, ce qui permet de confondre σ et σ_0 aussi bien que λ et λ_0 quand ils apparaissent comme facteurs multiplicatifs. On utilise un monochromateur dont la dispersion est dans un cas linéaire en nombre d'onde (méthode photoélectrique), dans l'autre cas linéaire en longueur d'onde (méthode photographique).

Dans les deux méthodes, on étudie les interférences entre deux faisceaux ayant parcouru des chemins de longueurs géométriques différentes et dont l'un a traversé le gaz à étudier. L'état d'interférence en un point peut être décrit par l'ordre d'interférence k qui dépend de la longueur d'onde, de l'indice du milieu pour cette longueur d'onde et de la différence de longueur entre les deux bras de l'interféromètre, ce qu'on peut écrire

$$k = [(n(\sigma) - 1)\ell - x]\sigma .$$

Dans la méthode photoélectrique on étudie la variation de l'ordre d'interférence en fonction du nombre d'ondes à partir de $\sin 2\pi k$, x restant constant. Dans la méthode photographique, on étudie comment il faut faire varier la différence de longueur géométrique x entre les bras de l'interféromètre pour que l'ordre d'interférence reste constant, soit $x = k\lambda - (n-1)\ell$ (k restant constant).

Dans la méthode photoélectrique, la forme des courbes est fixée quand x est choisi. Au contraire, dans la méthode photographique, la forme des courbes dépend de k , l'ordre d'interférence moyen, dont le choix est équivalent au choix de x et de l'angle du coin d'air α . Le choix de k fixe la position des crochets, on peut faire varier la pente de la partie linéaire des franges en faisant varier α . La finesse des franges est 2 (franges sinusoidales), elles apparaissent comme des bandes, de largeur constante en ordonnée dont la courbe moyenne est décrite par l'équation donnée précédemment $y(\lambda)$, elles se déduisent les unes des autres par translation. La largeur de ces

bandes détermine la précision avec laquelle les nombres d'ondes sont mesurés, alors que, sur les courbes que nous enregistrons, c'est le bruit qui fixe la précision. La possibilité de faire varier la forme des franges en faisant varier α n'a que peu d'intérêt puisqu'alors la largeur des courbes en ordonnée varie mais pas leur largeur en abscisse. Ainsi, dans la méthode photographique, la précision des mesures est déterminée par les caractéristiques des plaques photographiques, alors que dans la méthode photoélectrique la précision est déterminée par la qualité du rapport signal sur bruit, qu'on peut espérer augmenter en améliorant les qualités des éléments du montage (stabilité mécanique de l'interféromètre - qualité des récepteurs photoélectriques). Cependant, dans ces deux méthodes, la précision est d'autant plus grande que la résolution du monochromateur est plus grande.

III. Mesure de forces d'oscillateur de transitions infrarouges.

1. Introduction.

La méthode que nous venons de décrire a été appliquée à l'étude de transitions visibles (transitions $2p^53s - 2p^53p$ du Néon I), l'analyse du spectre cannelé fourni par l'interféromètre de Michelson étant faite à l'aide d'un monochromateur à réseau. Pour étudier des transitions infrarouges, nous avons utilisé un spectromètre de Fourier, qui permet une analyse à haute résolution, dans d'excellentes conditions de luminosité. Nous avons ainsi mesuré des forces d'oscillateur dans l'oxyde de carbone, sur la bande 2-0 de vibration-rotation située à environ $4\ 200\text{ cm}^{-1}$. La méthode de dépouillement a dû être modifiée, puisqu'il ne s'agit plus de raies isolées (la distance entre deux raies est de l'ordre de 4 cm^{-1} au centre de la bande).

2. Indice de réfraction le long de la bande 2-0 de CO .

La formule simple que nous avons établie pour l'indice de réfraction au voisinage d'une raie isolée ne peut plus être utilisée ici. La formule de Kramers-Heisenberg peut cependant être simplifiée dans le cas d'une bande isolée. Nous avons étudié la bande 2-0 de l'oxyde de carbone à température ordinaire ; dans ces conditions, la population des niveaux de vibration-rotation de l'état fondamental est beaucoup

plus grande que celle des autres niveaux ; la contribution à l'indice de réfraction des transitions $\Delta v = 2$ autres que 2-0, qui se situent dans le même domaine spectral est tout à fait négligeable ; les transitions $\Delta v \neq 2$ se situent dans un domaine spectral suffisamment éloigné pour que, le long de la bande 2-0, leur contribution à l'indice de réfraction soit négligeable. L'indice de réfraction le long de la bande 2-0 ne dépend que des forces d'oscillateur de ces transitions.

Les transitions de la bande 2-0 sont indicées par m défini par

$m = -J$ pour les transitions P de niveau inférieur J ,

$m = J+1$ pour les transitions R de niveau inférieur J .

En spectroscopie moléculaire on introduit la force de raie et la force de bande, dont les relations avec les éléments de matrice du dipôle sont donnés dans l'article placé en annexe. En ces termes l'indice de

$$\text{réfraction est } n-1 = \frac{p}{2\pi^2} \sum_m \frac{S_m(T)}{\sigma_m^2 - \sigma^2}$$

p est la pression du gaz en atm.

σ_m est le nombre d'ondes de la transition en cm^{-1}

$S_m(T)$ est la force de raie de la transition exprimée en $\text{atm}^{-1} \text{cm}^{-2}$.

La force de bande est donnée par

$$S_m(T) = S_{20}(T) \frac{F(m) |m| \sigma(m) e^{-E_J/kT} (1 - \exp \frac{hc\sigma(m)}{kT})}{\sum_m F(m) |m| \sigma(m) e^{-E_J/kT} (1 - \exp \frac{hc\sigma_m}{kT})}$$

$S_{20}(T)$ est la force de bande à température T ,

E_J est l'énergie du niveau inférieur de la transition,

les coefficients $F(m)$ sont les coefficients d'Hermann et Wallis.

Nous avons utilisé les valeurs des nombres d'ondes des transitions mesurées par Guelachvili * et les valeurs de coefficients d'Hermann et Wallis donnés par V. G. Kunde **. Nous avons mesuré la pression et la température du gaz. L'indice de réfraction le long de la bande 2-0 est alors une fonction de σ où seul est inconnu le coefficient multiplicatif $S_{20}(T)$. C'est cette force de bande que nous avons mesurée.

3. Application de la méthode des crochets photoélectrique à l'étude de la bande 2-0 de CO.

Nous étudions la transmission d'un interféromètre de Michelson éclairé en lumière blanche, dont un bras contient un tube d'oxyde de carbone (Une description plus complète du montage est faite dans l'article placé en annexe). La transmission est sinusoïdale sauf au voisinage de chaque raie de la bande. Avec les notations introduites précédemment, l'ordre d'interférence pour le nombre d'ondes est

$$p(\sigma) = \sigma x - \frac{p\ell\sigma}{2\pi^2} \sum_m \frac{S_m(T)}{\sigma_m^2 - \sigma^2}$$

* G. Guelachvili Opt. Comm. 8 171 (1973).

** V. G. Kunde Tables of theoretical line positions and intensities for the $\Delta v = 1$, $\Delta v = 2$ and $\Delta v = 3$ vibration-rotation bands of $C^{12}O^{16}$ and $C^{13}O^{16}$ Goddard Space Flight Center, Greenbelt Maryland.

Pour des valeurs convenables de $\frac{x}{p\lambda}$, l'ordre d'interférence présente un extremum de chaque côté de chaque raie de la bande. Comme dans le cas d'une raie isolée, pour une valeur choisie de $p\lambda$, leur position dépend de la valeur de x ; si x est trop grand les extremums sont très près des raies et ne peuvent être observés; si on diminue x , les extremums s'éloignent de la raie, les deux extremums situés entre deux raies voisines se rapprochent puis disparaissent. Aux extremums de l'ordre d'interférence correspondent des extremums de la transmission que nous détectons. La forme de l'indice n'étant plus hyperbolique, les extremums n'ont plus les mêmes propriétés que dans le cas d'une raie isolée, nous avons cependant utilisé une méthode analogue pour mesurer la force de bande de la bande 2-0 de CO.

Dans le cas d'une raie isolée, nous avons mesuré les nombres d'ondes de couples de points σ_i' σ_i'' de part et d'autre d'un extremum, correspondant à la même valeur de l'ordre d'interférence et traité les couples indépendamment. L'avantage de cette méthode de mesure est que nous ne cherchons pas à mesurer l'ordre d'interférence donc nous évitons les erreurs qui pourraient intervenir dans la détermination de l'ordre d'interférence p à partir des valeurs de $\cos 2\pi p$. Pour la bande 2-0 de CO nous avons de la même façon mesuré les nombres d'ondes de couples de points σ_i' σ_i'' situés de part et d'autre d'un extremum; nous avons ainsi déterminé plusieurs couples pour chaque extremum et nous avons déterminé $S_{20}(T)$ comme la valeur pour laquelle l'ordre d'interférence est le même pour les deux points d'un couple σ_i' σ_i'' , c'est-à-dire que nous avons pris pour $S_{20}(T)$ la valeur qui rend minimale la fonction $\sum_i [p(\sigma_i') - p(\sigma_i'')]^2$.

4. Conclusion.

Cette expérience a montré la possibilité d'étendre la méthode des crochets photoélectrique à l'étude de transitions infrarouges (4200cm^{-1}) pour lesquelles la méthode photographique ne peut être employée. Le problème le plus important que pose l'étude des bandes moléculaires est lié à la proximité des raies. Dans le cas de la bande 2-0 de CO, la distance entre deux raies voisines est de l'ordre de 4 cm^{-1} pour les faibles valeurs de $|m|$. Nous avons utilisé l'interféromètre de Fourier avec une limite de résolution de $0,008\text{ cm}^{-1}$, il est ainsi possible d'étudier la transmission de l'interféromètre de Michelson entre deux raies de la bande, ce qui serait très difficile avec un spectromètre classique. Le fait d'utiliser une méthode photoélectrique nous permet de bénéficier des avantages liés à l'utilisation de la spectrométrie de Fourier dans le domaine infrarouge et on peut penser que notre méthode resterait plus précise que la méthode photographique, même si des plaques photographiques étaient réalisées dans l'infrarouge, puisque la méthode photographique impose l'utilisation d'un spectromètre à réseau.

IV. Utilisation d'un laser monomode accordable.

1. Introduction.

Dans la méthode photoélectrique que nous avons décrite dans le premier paragraphe de ce chapitre, on étudie, à l'aide d'un spectromètre, la transmission d'un interféromètre de Michelson éclairé par une source blanche. On peut remplacer l'ensemble — source blanche-spectromètre — par une source monochromatique accordable. Nous avons utilisé un laser à colorant monomode accordable, mais au point par J. Pinard et S. Liberman. La fréquence d'oscillation peut être balayée par pas de 0,25 mK sur une plage de l'ordre de 600 mK, la longueur d'onde moyenne pouvant varier de 5700 Å à 6200 Å. L'équivalent de la largeur de la fonction d'appareil du spectromètre est alors la stabilité en fréquence du mode laser.

Nous avons vu que la précision des mesures faites par la méthode précédente était limitée par la résolution du spectromètre. La fréquence d'oscillation du laser est définie à mieux que 0,1 mK, on réalise ainsi une source très monochromatique et on peut ainsi espérer augmenter la précision de la méthode. Cependant l'intensité lumineuse fournie par le laser n'est pas très stable et si nous avons appliqué exactement la méthode précédente, un rapport signal sur bruit trop faible nous aurait empêché de tirer parti des possibilités qu'offre la grande finesse du mode laser. Nous avons donc modifié le montage

expérimental de manière à mesurer non la transmission de l'interféromètre mais directement l'ordre d'interférence. Le détail de ce dispositif est décrit dans l'article placé en annexe, nous n'en rappellerons que le principe.

2. Dispositif expérimental - Principe.

Un bras de l'interféromètre contient une lame $\frac{\lambda}{8}$ (qui est traversée 2 fois). L'interféromètre est éclairé en lumière polarisée rectilignement à 45° des axes de la lame $\frac{\lambda}{8}$. Les deux polarisations, parallèles aux axes de la lame, sont séparées à la sortie de l'interféromètre par deux polariseurs croisés qui reçoivent respectivement le faisceau transmis et le faisceau réfléchi par une lame séparatrice auxiliaire. Pour ces deux polarisations la différence de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre est respectivement Δ et $\Delta + \frac{\lambda}{4}$ la transmission est donc $1 + \cos 2\pi\sigma\Delta$ et $1 + \sin 2\pi\sigma\Delta$. Par un traitement approprié des signaux on obtient les signaux

$$X = T(\sigma) \cos 2\pi\sigma\Delta$$

et
$$Y = T(\sigma) \sin 2\pi\sigma\Delta$$

où T est la transmission du tube.

En appliquant X et Y sur les voies horizontale et verticale d'un oscilloscope, on obtient un point dont l'azimuth est $2\pi\sigma\Delta$. Nous étudions la forme de la figure décrite sur l'oscilloscope par le spot, quand le nombre d'ondes de la radiation laser varie d'un côté à l'autre

de la raie à étudier. Une mesure plus précise de la phase pourrait être faite à partir des signaux X et Y par un dispositif électronique approprié, qui n'a pas été réalisé pour l'expérience de principe que nous présentons.

3. Description des courbes obtenues.

Nous avons vu que $\sigma\Delta = \sigma x + \frac{A}{\sigma - \sigma_0}$ au voisinage de la transition σ_0 .

Quand on fait varier la longueur d'onde du laser d'un côté à l'autre de σ_0 , loin de la raie, le spot décrit un cercle à vitesse angulaire constante, puis la vitesse angulaire diminue jusqu'à être nulle pour $\sigma - \sigma_0 = -\sqrt{\frac{A}{x}}$ après quoi le spot décrit un cercle dans le sens inverse. Comme alors la transmission du tube diminue, le rayon du cercle diminue, le spot décrit une spirale qui s'achève au centre du premier cercle, quand la lumière est complètement absorbée. Quand $\sigma > \sigma_0$ les mêmes phénomènes se produisent dans le sens inverse. La figure présente donc deux points de rebroussement pour $\sigma_{\pm} - \sigma_0 = \pm \sqrt{\frac{A}{x}}$. L'azimuth du spot en ces points est respectivement

$$2\pi[\sigma_0 x + 2\sqrt{Ax}] \quad \text{et} \quad 2\pi[\sigma_0 x - 2\sqrt{Ax}] .$$

Entre les deux points de rebroussement l'ordre d'interférence a varié de $4\sqrt{Ax}$, l'écart angulaire entre ces deux points est $8\pi\sqrt{Ax}$. Si on mesure un angle θ entre ces deux points on peut affirmer que

$$8\pi\sqrt{Ax} = \theta + 2k\pi$$

sans toutefois connaître la valeur de k .

En mesurant la distance en nombre d'ondes des deux points de rebroussement, on détermine $\sigma_+ - \sigma_- = 2\sqrt{\frac{A}{x}}$. Cette mesure n'est pas très précise, à cause de l'instabilité en intensité du laser qui n'est que partiellement corrigée par l'utilisation d'un ratiomètre. Hors de la raie un tour est décrit quand le nombre d'ondes varie de $\frac{1}{x}$, on peut ainsi mesurer x . Ces deux dernières mesures donnent une valeur approchée de A qui permet de déterminer k . A est alors calculé avec précision à partir de la mesure de θ . La procédure que nous avons employé est un peu différente, mais nous pouvons discuter des performances de cette méthode sur ces bases (cf. article placé en annexe).

4. Précision des mesures - Valeurs accessibles à la mesure.

La valeur de A est déterminée à partir de la mesure de x et de la mesure de $p = k + \frac{\theta}{2\pi} = 4\sqrt{Ax}$. La partie entière de p est déterminée par la mesure de $\sqrt{\frac{A}{x}}$ qui peut ne pas être précise, puisqu'elle donne seulement l'ordre de grandeur de p . La précision avec laquelle A est déterminée est donc liée à la précision de la mesure de x et de la mesure de θ .

Mesure de x . Pour déterminer x on mesure l'angle $\delta\varphi$ dont tourne le spot quand le nombre d'ondes varie de $\delta\sigma$ (Cette mesure est faite loin de la raie). On obtient x sous la forme $x = \frac{\delta\varphi}{2\pi\delta\sigma}$. L'incertitude absolue sur la mesure de l'angle $\delta\varphi$ est constante (ε), de

même $\delta\sigma$ est connu à un pas près. Nous verrons plus loin qu'il n'est pas souhaitable de choisir des valeurs de x faibles. On peut donc obtenir x avec grande précision à condition de mesurer un angle $\delta\varphi$ assez grand et nous négligerons l'incertitude due à la mesure de x .

Mesure de p . La mesure de θ est faite avec une incertitude absolue (ϵ) constante. Si on néglige l'incertitude sur la mesure de x l'incertitude sur la mesure de A est donnée par

$$\Delta A = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{A}{x}} \Delta p \quad .$$

L'incertitude absolue sur la mesure de p étant une constante de l'expérience, la mesure de A sera d'autant plus précise que $2\sqrt{\frac{A}{x}}$, c'est-à-dire la distance en nombre d'ondes des crochets, sera plus petite, donc que x sera plus grand. Ces formules ont été établies en supposant que les mesures étaient faites dans un domaine de nombre d'ondes tel que $|\sigma - \sigma_0|$ soit nettement plus grand que la largeur de raie. La valeur limite de $\sqrt{\frac{A}{x}}$ acceptable doit être déterminée dans chaque cas en fonction des largeurs homogène et inhomogène de la transition étudiée. On obtient ainsi une valeur minimale de l'incertitude absolue sur la mesure de A . Dans le cas particulier des transitions $2p^5 3s - 2p^5 3p$ du Néon I, la distance entre les points de rebroussement doit être supérieure à 200 mK pour que l'erreur systématique faite sur A soit inférieure à 1%. Si p est déterminé à $\frac{1}{100}$ de tour près, l'incertitude minimale faite sur A est de $0.5 \cdot 10^{-3}$. Dans le cas où l'épaisseur de vapeur traversée est de 1m, l'incertitude minimale faite sur la valeur de Nl est de l'ordre de $2.5 \cdot 10^8 \text{ cm}^{-3}$ [Cette

estimation de Δp est pessimiste et il est possible avec un appareillage approprié de mesurer un millième de tour].

5. Conclusion.

Les mesures préliminaires que nous avons faites n'ont pas permis d'augmenter notablement la précision sur la mesure des forces d'oscillateur relatives des transitions $2p^5_3s - 2p^5_3p$ du Néon I. Cependant, il est possible de diviser l'incertitude par un facteur 10 en analysant différemment les signaux. La limitation sera alors due aux instabilités résiduelles de l'interféromètre. Si nous comparons les formules obtenues pour l'incertitude dans la détermination de A par ces deux méthodes nous voyons que ces formules sont tout à fait analogues

$$\Delta A_T = \frac{2}{\pi} (\sigma_1 - \sigma_0) \frac{B}{S} \quad \text{dans l'étude de la transmission,}$$

$$\Delta A_p = 2 \sqrt{\frac{A}{x}} \Delta p \quad \text{dans l'étude de l'ordre d'interférence.}$$

Si les instabilités se traduisent par une incertitude $\Delta\alpha$ sur la phase nous aurons $\Delta p = \frac{\Delta\alpha}{2\pi}$ et $\frac{S}{B} = \frac{2}{\Delta\alpha}$ conduisant aux formules

$$\Delta A_T = (\sigma_1 - \sigma_0) \frac{\Delta\alpha}{\pi} \quad \text{et} \quad \Delta A_p = \sqrt{\frac{A}{x}} \frac{\Delta\alpha}{\pi}$$

Dans les deux cas, $(\sigma_1 - \sigma_0)$ ou $\sqrt{\frac{A}{x}}$ doivent correspondre au domaine de validité de la formule de l'indice. Mais, dans le cas où l'on étudie la transmission, il faut de plus que la transmission du gaz étudié soit bien égale à A pour cette valeur de σ_1 , alors que dans le cas où l'on étudie l'ordre d'interférence, la méthode reste justifiée même si le milieu est absorbant.

Tant que l'analyse spectrale est faite à l'aide d'un spectromètre classique, c'est essentiellement la résolution qui limite le domaine de nombres d'ondes utile et les deux méthodes -- mesure de transmission -- mesure de l'ordre d'interférence, seront équivalentes. En revanche, l'utilisation d'un laser monomode accordable, nous permet d'analyser la transmission de l'interféromètre avec l'équivalent d'une résolution qui serait plus de 100 fois plus grande que celle que les meilleurs spectromètres classiques fournissent et, dans ce cas, la mesure de l'ordre d'interférence donne des mesures plus précises que la mesure de la transmission.

V. Comparaison avec d'autres méthodes photoélectriques de mesure de l'indice de réfraction.

Les méthodes que nous avons proposées sont une transposition photoélectrique de la méthode des crochets, puisque nous avons conservé le principe de comparer les variations d'indice du milieu à étudier avec les caractéristiques géométriques d'un interféromètre. Des dispositifs expérimentaux analogues (interféromètre à deux ondes dont un bras contient la vapeur à étudier) ont été utilisés dans des méthodes assez différentes : Mesure directe de l'indice (Legay) et Spectroscopie d'amplitude (Phase Fourier Transform; Bell). Nous exposerons brièvement ces méthodes et leur rapport avec les méthodes que nous avons mises au point.

1. Mesure directe de l'indice.

Le dispositif expérimental est formé d'un interféromètre de Michelson dont les deux bras sont parfaitement identiques et contiennent chacun un tube. L'interféromètre est éclairé par une source blanche et le spectre cannelé est analysé par un monochromateur.

Une première partie de l'expérience consiste à déterminer l'indice de réfraction pour un nombre d'ondes déterminé (hors de la raie d'absorption). L'interféromètre est réglé à la différence de marche

nulle. L'un des tubes est progressivement rempli par le gaz à étudier, jusqu'à une pression préalablement choisie. En observant la transmission de l'interféromètre, pendant cette opération, on peut déterminer la variation d'ordre d'interférence pour le nombre d'ondes choisi et en déduire l'indice de réfraction sachant que la différence de marche dans l'interféromètre est alors $(n-1)l$. La deuxième partie de l'expérience consiste à étudier la variation de l'indice en fonction du nombre d'ondes, donc à analyser le spectre cannelé, sans modification du milieu, ni de la longueur des bras de l'interféromètre. A partir du spectre cannelé, on mesure l'ordre d'interférence pour chaque nombre d'ondes. Connaissant point par point la valeur de l'indice de réfraction, on déduit la valeur des forces d'oscillateur des raies en utilisant la formule de Kramers-Heisenberg.

Bien que le montage expérimental soit très proche de celui utilisé dans la méthode des crochets, l'interprétation du spectre cannelé soulève des difficultés différentes. Dans la méthode des crochets, on cherche à déterminer des couples de nombres d'ondes correspondant à un même ordre d'interférence, mais on ne cherche pas la valeur de l'ordre d'interférence, c'est-à-dire qu'on évite le problème délicat qui consiste à déterminer la phase connaissant une fonction trigonométrique (déterminer φ à partir de $A(1 + \cos \varphi)$). La mesure de l'ordre d'interférence à partir des franges du spectre cannelé n'est précise que si on peut se contenter de repérer les ordres d'interférence multiples de $\frac{1}{4}$. Cette méthode ne peut donc s'appliquer qu'à l'étude de milieux très absorbants. Enfin dans le cas de transitions atomiques

isolées, où la forme de l'indice est très simple, la méthode des crochets évite les calculs toujours longs par lesquels on ajuste une courbe calculée et une courbe mesurée.

2. Spectroscopie d'amplitude (Phase Fourier Transform).

Dans cette méthode, on utilise aussi un interféromètre de Michelson éclairé en lumière blanche dont un bras contient le milieu à étudier, mais la mesure de l'indice de réfraction est beaucoup moins directe que par la méthode précédente ou par la méthode des crochets, où les bras de l'interféromètre ont une longueur constante pendant une mesure. Dans la méthode de Spectroscopie d'amplitude, on fait varier la différence de marche dans l'interféromètre par pas, de part et d'autre de la différence de marche nulle. On calcule des transformées de Fourier en sinus et en cosinus du spectrogramme, ce qui permet d'obtenir pour des nombres d'ondes variant par pas les valeurs de $\sin 2\pi(n-1)l$ et $\cos 2\pi(n-1)l$, à partir desquelles on calcule la valeur de l'indice de réfraction pour chacun de ces nombres d'ondes. Cette méthode présente toutes les difficultés liées à l'usage des interféromètres par Transformation de Fourier : le réglage de l'interféromètre doit être parfaitement conservé pendant tout le mouvement du miroir mobile - la différence de marche nulle (en l'absence du milieu à étudier) doit être très bien définie. Cette méthode a été utilisée pour l'étude de liquides ou de gaz, à température ordinaire pour des nombres d'ondes de l'ordre de 200 cm^{-1} , mais il serait très difficile de réaliser de bonnes conditions

de fonctionnement pour étudier une vapeur très chaude ou un plasma dans une décharge, dans le domaine de nombres d'ondes plus grands (proche infrarouge ou visible).

CONCLUSION

Le but assigné initialement à ce travail était de chercher à améliorer les possibilités de la méthode de mesure de forces d'oscillateur par étude de la dispersion anormale, dite méthode des crochets. Il semblait a priori possible de travailler dans deux directions : d'une part, une extension du domaine spectral dans lequel la méthode peut être appliquée, d'autre part, une augmentation de la précision des mesures. Ces deux améliorations ne pouvaient être obtenues qu'après la réalisation d'une version photoélectrique de cette méthode. Notre but était donc de nature essentiellement méthodologique.

Une version photoélectrique de la méthode des crochets a effectivement été mise au point, tout d'abord dans le domaine visible, où il s'agissait essentiellement d'améliorer la précision par rapport à la méthode photographique. Cette expérience a montré que la précision des mesures était principalement liée à la résolution du spectromètre d'analyse utilisé. C'est pourquoi nous avons réalisé une expérience fondée sur un principe nouveau (mesure directe de la phase des interférences) et reposant sur l'utilisation d'un laser à colorant monomode accordable.

Nous nous sommes ensuite intéressée à l'extension vers l'infrarouge du domaine d'application de la méthode mise au point dans le visible. Il est apparu que le spectromètre le mieux adapté à ce type d'expérience était un spectromètre de Fourier. Cependant dans le domaine infrarouge, il semble que dans les conditions expérimentales

usuelles, seules les premières transitions de résonance sont suffisamment absorbées pour conduire à des mesures significatives de forces d'oscillateur. Nous avons choisi, pour illustrer la méthode, de mesurer la force de bande de la bande 2-0 de CO pour laquelle nous avons obtenu une valeur expérimentale plus précise que les déterminations précédentes.

On peut considérer que les buts que nous nous étions fixés, au début de ce travail, ont été atteints. Les méthodes que nous présentons sont susceptibles d'une exploitation intensive, mais dans chaque cas particulier une étude doit être faite des conditions dans lesquelles le gaz étudié peut présenter une absorption suffisante.

APPENDICE 1

Calcul semi classique de l'indice de réfraction d'un gaz.

Le but de ce calcul est de montrer l'origine de la dispersion anormale. Afin d'alléger ce calcul nous avons fait quelques hypothèses simplificatrices. Le gaz est traité comme un ensemble de systèmes à deux niveaux non dégénérés, le champ électromagnétique est traité comme une onde plane scalaire se propageant dans la direction x .

Equations du champ électromagnétique.

Le champ est pris sous la forme :

$$\mathcal{E}(x,t) = E(x) \cos(\omega t - kx) .$$

Il induit une polarisation $\mathcal{P}(x,t)$ dans le gaz.

L'équation de propagation du champ s'écrit :

$$\nabla^2 \mathcal{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathcal{E}}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \mathcal{P}}{\partial t^2} .$$

Equations de l'atome.

Nous utiliserons le formalisme de la matrice densité. Les énergies des niveaux a et b sont E_a et E_b avec $E_a - E_b = \hbar \omega_{ab}$ (a niveau supérieur, b niveau inférieur). La perturbation créée par le champ est $\mathcal{V} = - \mathcal{E} P$. P est l'opérateur polarisation

$P = \begin{pmatrix} 0 & p_{ab} \\ p_{ba} & 0 \end{pmatrix}$ où $p_{ab} = p_{ba} = \mu$ est l'élément de matrice du dipôle entre les états a et b .

On suppose que le peuplement des niveaux est assuré par un mécanisme extérieur représenté par la matrice $\Lambda = \begin{pmatrix} \lambda_a & 0 \\ 0 & \lambda_b \end{pmatrix} i\pi$.

Les constantes de relaxation des populations des niveaux a et b sont respectivement γ_a et γ_b , la constante de relaxation de la cohérence est γ_{ab} .

Les équations de Bloch s'écrivent :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho_{aa}}{\partial t} &= \lambda_a - \gamma_a \rho_{aa} - \frac{i\mathcal{E}}{\hbar} (\rho_{ab} p_{ba} - \rho_{ba} p_{ab}) \\ \frac{\partial \rho_{bb}}{\partial t} &= \lambda_b - \gamma_b \rho_{bb} + \frac{i\mathcal{E}}{\hbar} (\rho_{ab} p_{ba} - \rho_{ba} p_{ab}) \\ \frac{\partial \rho_{ab}}{\partial t} &= -\gamma_{ab} \rho_{ab} - i\omega_{ab} \rho_{ab} + \frac{i\mathcal{E}}{\hbar} p_{ab} (\rho_{bb} - \rho_{aa}) \end{aligned}$$

La polarisation d'un atome est $p = \text{Tr}(\rho P)$

$$p = \rho_{ab} p_{ba} + \rho_{ba} p_{ab}$$

L'équation d'évolution de la polarisation se déduit des équations de Bloch

$$\frac{\partial^2 p}{\partial t^2} + 2\gamma_{ab} \frac{\partial p}{\partial t} + (\gamma_{ab}^2 + \omega_{ab}^2)p = 2\mathcal{E} \frac{\omega_{ab} \mu^2}{\hbar} (\rho_{bb} - \rho_{aa})$$

La densité de systèmes est \mathcal{N}_0 . La polarisation macroscopique est $\mathcal{P} = \mathcal{N}_0 p$. La différence de densité de population entre les niveaux a et b est $N = (\rho_{bb} - \rho_{aa}) \mathcal{N}_0$.

Comme on n'a tenu aucun compte de l'orientation des atomes, il faut considérer que seul un tiers d'entre eux possède une polarisation se propageant dans la direction x .

L'équation d'évolution de la polarisation macroscopique devient :

$$\frac{\partial^2 \mathcal{P}}{\partial t^2} + 2 \gamma_{ab} \frac{\partial \mathcal{P}}{\partial t} + (\omega_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2) \mathcal{P} = \frac{2}{3} \frac{\mathcal{E}}{\hbar} \omega_{ab} \mu^2 N$$

A partir des équations de la matrice densité on peut également établir l'équation d'évolution de N

$$\frac{\partial N}{\partial t} + \Gamma_{ab} (N - N^0) = - \frac{2}{\hbar} \frac{\mathcal{E}}{\omega_{ab}} \left(\frac{\partial \mathcal{P}}{\partial t} + \gamma_{ab} \mathcal{P} \right)$$

où N^0 est la différence de densité de population en l'absence de champ : $N^0 = \frac{\lambda_b}{\gamma_b} - \frac{\lambda_a}{\gamma_a}$ et $\Gamma_{ab} = \frac{1}{\gamma_a} + \frac{1}{\gamma_b}$.

Nous supposons maintenant que \mathcal{E} est un champ monochromatique dont la fréquence ω n'est pas très éloignée de la fréquence propre de la transition ab : ω_{ab} , plus précisément nous supposons que $|\omega - \omega_{ab}| \ll \omega, \omega_{ab}$. Nous appliquons l'approximation du champ tournant, en considérant que la polarisation macroscopique sera $\mathcal{P} + \mathcal{P}^*$ ($\mathcal{P} e^{-i\omega t}$ variant lentement) et la différence de densité de population $\text{Re } N$, \mathcal{P} et N satisfaisant les équations

$$\left[\frac{\partial^2}{\partial t^2} + 2 \gamma_{ab} \frac{\partial}{\partial t} + \omega_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2 \right] \mathcal{P} = \frac{E(x) e^{-i\omega t} \mu^2}{3\hbar} N \omega_{ab}$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \Gamma_{ab} \right) (N - N^0) = - \frac{E(x) e^{-i\omega t}}{\hbar \omega_{ab}} \left(\frac{\partial}{\partial t} + \gamma_{ab} \right) \mathcal{P}$$

En combinant ces deux équations nous obtenons l'équation différentielle dont \mathcal{P} est solution.

$$\left[\left(\frac{\partial}{\partial t} + \Gamma_{ab} \right) e^{-i\omega t} \left(\frac{\partial^2}{\partial t^2} + 2\gamma_{ab} \frac{\partial}{\partial t} + \omega_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2 \right) + e^{-i\omega t} \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2} \left(\frac{\partial}{\partial t} + \gamma_{ab} \right) \right] \mathcal{P} = \frac{E \omega_{ab} \mu^2 N^0 \Gamma_{ab}}{3\pi}$$

Indice de réfraction et coefficient d'absorption.

Pour calculer l'indice de réfraction et le coefficient d'absorption du gaz nous devons chercher les solutions purement oscillantes de l'équation différentielle en \mathcal{P} , nous chercherons \mathcal{P} de la forme: $P e^{i\omega t}$

$$\mathcal{P} = \frac{E \omega_{ab} \mu^2 N^0}{3\pi} \cdot \frac{e^{i\omega t}}{\omega_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2 - \omega^2 + 2i\omega\gamma_{ab} + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2} \left(\frac{i\omega + \gamma_{ab}}{\Gamma_{ab}} \right)}$$

Quand le champ traverse le gaz il se propage à la vitesse $\frac{k}{\omega}$ et est absorbé : $E(x) = E(0) e^{-\lambda x}$

Nous pouvons écrire l'équation de propagation sous la forme

$$(\lambda + ik)^2 = -\frac{\omega^2}{c^2} \left(1 + \frac{4\pi}{3\pi} \frac{2\omega_{ab} \mu^2 N^0}{\left(\omega_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2 - \omega^2 + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2} \frac{2\gamma_{ab}}{\Gamma_{ab}} \right) + i\omega \left(2\gamma_{ab} + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2 \Gamma_{ab}} \right)} \right)$$

On introduit la force d'oscillateur de la transition définie par

$$f = \frac{2m \omega_{ab} \mu^2}{3\pi e^2}$$

Quand il s'agit d'un gaz le second terme de la quantité entre parenthèses est généralement petit devant 1 et on peut écrire :

$$\lambda + ik = \frac{i\omega}{c} \left(1 + \frac{2\pi N e^2 f}{m} \times \frac{1}{\left(\omega_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2 - \omega^2 + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2} \frac{\gamma_{ab}}{\Gamma_{ab}} \right) + i\omega \left(2\gamma_{ab} + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2 \Gamma_{ab}} \right)} \right)$$

$$n = 1 + \frac{2\pi N e^2 f}{m} \cdot \frac{\omega_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2 - \omega^2 + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2} \frac{\gamma_{ab}}{\Gamma_{ab}}}{\left[\omega_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2 - \omega^2 + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2} \frac{\gamma_{ab}}{\Gamma_{ab}} \right]^2 + \omega^2 \left[2\gamma_{ab} + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2 \Gamma_{ab}} \right]^2}$$

$$\lambda = \frac{2\pi N e^2 f}{mc} \cdot \frac{\omega^2 \left(2\gamma_{ab} + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2 \Gamma_{ab}} \right)}{\left[\omega_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2 - \omega^2 + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2} \frac{\gamma_{ab}}{\Gamma_{ab}} \right]^2 + \omega^2 \left[2\gamma_{ab} + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2 \Gamma_{ab}} \right]^2}$$

Au voisinage de ω_{ab} , on retrouve la forme classique d'une courbe de dispersion

$n = 1$ pour ω_0 voisin de ω_{ab}

$$\omega_0^2 = \omega_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2 + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2} \frac{\gamma_{ab}}{\Gamma_{ab}}$$

n présente deux extremums à peu près symétriques par rapport à ω_0 :

pour $\omega \approx \omega_0 \pm \left(\gamma_{ab} + \frac{E^2 \mu^2}{6\pi^2 \Gamma_{ab}} \right)$ les valeurs prises par l'indice pour

ces extremums sont :

$$n \approx 1 \pm \frac{1}{2\omega_0 \left(2\gamma_{ab} + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2 \Gamma_{ab}} \right)}$$

En dehors de la partie centrale de la courbe, c'est-à-dire pour

$|\omega - \omega_{ab}| \gg 2\gamma_{ab} + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2 \Gamma_{ab}}$, on peut prendre pour l'indice de réfraction

la formule simplifiée

$$n-1 = \frac{2\pi N e^2 f}{m} \times \frac{1}{\omega_{ab}^2 - \omega^2}$$

$$n-1 = \frac{N e^2 f}{2\pi m c^2} \times \frac{1}{\sigma_{ab}^2 - \sigma^2}$$

On retrouve ainsi le terme correspondant à la transition ab dans la formule de Kramers-Heisenberg.

APPENDICE 2

Possibilité d'utiliser une source monochromatique en impulsion.

Nous avons vu que la précision des mesures de forces d'oscillateur pouvait être améliorée par l'utilisation d'un laser monomode accordable. A l'heure actuelle, l'oscillation continue de laser à colorants n'est obtenue que dans une gamme de longueur d'onde assez étroite, alors que l'oscillation en impulsion est obtenue dans une gamme beaucoup plus étendue, nous avons donc cherché dans quelles conditions des mesures pourraient être faites avec ces instruments.

Le calcul de la réponse d'un milieu à une impulsion est très compliqué et n'est résolu que dans quelques cas particuliers. Nous cherchons à résoudre un problème plus simple qui est de savoir dans quelles conditions on pourra utiliser un champ en impulsion pour faire des mesures de dispersion. On se propose dans ce cas d'étudier les interférences qui se produisent entre l'impulsion issue du milieu et une impulsion identique à celle qui a pénétré dans le milieu. Il faut donc que l'impulsion soit peu déformée et que sa vitesse de propagation soit liée aux caractéristiques du milieu. Nous avons d'abord étudié la polarisation induite dans un gaz à l'établissement d'une onde électromagnétique à fréquence ω .

Nous utilisons l'équation différentielle en \mathcal{P} établie précédemment en supposant le champ nul pour $t < 0$ et de la forme $E e^{i\omega t}$ pour $t > 0$.

Cette équation s'écrit :

$$\left[\left(\frac{\partial}{\partial t} + \Gamma_{ab} - i\omega \right) \left(\frac{\partial^2}{\partial t^2} + 2\gamma_{ab} \frac{\partial}{\partial t} + \omega_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2 \right) + \frac{E^2 \mu^2}{3\hbar^2} \left(\frac{\partial}{\partial t} + \gamma_{ab} \right) \right] \mathcal{P} = \frac{E \omega_{ab} \mu^2 N^0 \Gamma_{ab} e^{i\omega t}}{3\hbar} .$$

L'équation caractéristique est :

$$(\lambda - i\omega + \Gamma_{ab})(\lambda^2 + 2\lambda \gamma_{ab} + \omega_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2) + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2} (\lambda + \gamma_{ab}) = 0 .$$

En champ nul les racines seraient

$$\begin{aligned} \lambda_1 &= i\omega - \Gamma_{ab} \\ \lambda_2 &= i\omega_{ab} - \gamma_{ab} \\ \lambda_3 &= -i\omega_{ab} - \gamma_{ab} . \end{aligned}$$

Si le champ n'est pas résonnant : $|\omega - \omega_{ab}| \gg \gamma_{ab}, \Gamma_{ab}$.

Les trois racines sont bien séparées et, en champ non nul, on peut faire un développement limité des racines. Comme nous considérons les solutions telles que $\mathcal{P} e^{-i\omega t}$ varie lentement nous ne tiendrons pas

compte de λ_3 . $\lambda_1 = i\omega - \Gamma_{ab} + i\varepsilon_1$ $\lambda_2 = i\omega_{ab} - \gamma_{ab} + i\varepsilon_2$

$$\varepsilon_1 = \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2} \times \frac{\omega}{\omega^2 - \omega_{ab}^2} \quad \varepsilon_2 = \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2} \times \frac{1}{\omega_{ab} - \omega} .$$

Pour $t > 0$ la polarisation sera de la forme

$$\mathcal{P} = \text{Re} \left[P_0 e^{i\omega t} + P_1 e^{(i\omega - \Gamma_{ab} + i\varepsilon_1)t} + P_2 e^{i(\omega_{ab} - \gamma_{ab} + i\varepsilon_2)t} \right]$$

P_0 , P_1 et P_2 seront déterminées par les conditions aux limites

$\mathcal{P}(0) \neq 0$; $\frac{\partial \mathcal{P}}{\partial t}(0) = 0$. Comme les deux fréquences ω et ω_{ab} sont

éloignées, les polarisations à ces deux fréquences doivent être séparées. P_2 est alors indéterminé, P_0 et P_1 sont donnés par les

formules suivantes :

$$P_0 = \frac{E \omega_{ab} \mu^2 N^0}{3\pi^2 \left[\omega_{ab}^2 + \gamma_{ab}^2 - \omega^2 + 2i\omega\gamma_{ab} + \frac{E^2 \mu^2}{3\pi^2} \left(\frac{i\omega + \gamma_{ab}}{\Gamma_{ab}} \right) \right]}$$

$$P_1 = -P_0 \frac{\omega}{\omega + \epsilon_1} - \frac{P_0 + P_0^*}{2} \frac{\epsilon_1 - i \Gamma_{ab}}{\omega + \epsilon_1}$$

On voit qu'un régime stationnaire s'établit au bout d'un temps de l'ordre de $\frac{1}{\Gamma_{ab}}$ après l'établissement du champ.

La dispersion du milieu correspond à la présence dans l'équation de propagation du champ du terme $\frac{\partial^2 \mathcal{P}}{\partial t^2}$.

$$\text{Pour } t \ll \Gamma_{ab} : \frac{\partial^2 \mathcal{P}}{\partial t^2} \approx \text{Re} (2\omega(\epsilon_1 + i \Gamma_{ab})P_0)$$

ce terme est plus petit que le terme obtenu dans le cas d'un régime stationnaire d'un facteur $\frac{2(\epsilon_1 + i \Gamma_{ab})}{\omega}$.

On peut donc penser que le front de l'impulsion se propagera à peu près sans déformation et sans que change sa vitesse de phase (c).

Avec des impulsions de durée de l'ordre de $\frac{1}{\Gamma_{ab}}$ il ne sera pas possible d'étudier la dispersion anormale. En revanche avec des impulsions plus longues ; longues devant $\frac{1}{\Gamma_{ab}}$, la forme de l'impulsion sera peu modifiée et elle se propagera, comme en régime stationnaire ; on pourra donc utiliser de telles impulsions pour étudier la dispersion anormale d'un gaz.

Au terme de cet exposé, je voudrais remercier tous ceux qui m'ont permis d'accomplir ce travail dans les meilleures conditions.

A MM. les Professeurs JACQUINOT et CHABBAL qui m'ont accueillie au Laboratoire Aimé Cotton et à M. le Professeur BROCHARD qui a dirigé cette thèse, je tiens à témoigner ma reconnaissance.

Jean VERGÈS et Patrick JUNCAR m'ont aidée à mener à bien une partie des expériences présentées dans ce mémoire ; j'ai vivement apprécié leur collaboration.

Aux techniciens du laboratoire et tout particulièrement à Michel OPPENHEIMER, Jacqueline CHEVILLARD et Geneviève FONTAINE je voudrais exprimer ma gratitude pour leur aimable efficacité.

Serge FENEUILLE, Sylvain LIBERMAN et Jacques PINARD ont consacré une part importante de leur temps à discuter avec moi des problèmes que j'ai eus à résoudre. Je leur suis profondément reconnaissante de l'intérêt qu'ils ont manifesté pour mon travail et du soutien moral que leur enthousiasme m'a apporté.

ANNEXE I

Classification
 Physics Abstracts :
 5.230 --- 5.235

MESURE DES FORCES D'OSCILLATEUR DANS LE SPECTRE DU NÉON I, PAR ÉTUDE DE LA DISPERSION ANORMALE

M. CRANCE

Laboratoire Aimé-Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, 91405 Orsay, France

(Reçu le 10 juillet 1973)

Résumé. — Nous avons réalisé une expérience de mesure de forces d'oscillateur relatives, par une méthode dérivée de la méthode des crochets de Rozhdestvenskii, qui est fondée sur l'étude de la dispersion anormale au voisinage d'une raie d'absorption. Nous effectuons, par un enregistrement photoélectrique, l'analyse spectrale de la figure d'interférence d'un interféromètre de Michelson éclairé en lumière blanche dont un bras contient la vapeur à étudier. Afin d'éprouver la méthode, nous avons mesuré les forces d'oscillateur de quelques transitions visibles du néon I ($2p^5 3s-2p^5 3p$) pour lesquelles on dispose de nombreuses mesures antérieures et de valeurs théoriques précises.

Abstract. — A method derived from the Rozhdestvenskii hook method is described. It is based on the study of anomalous dispersion close to an absorption line and it is used to measure relative oscillator strengths. Here one arm of a Michelson interferometer holds the vapor to be studied. Using a white light source the interferometer produces an interference pattern which is analyzed by a photoelectric spectrometer. In order to test the experiment, we have measured the oscillator strengths of some visible neon I transitions ($2p^5 3s-2p^5 3p$) for which many former measurements and precise theoretical values are available.

1. Introduction. — Les probabilités de transition radiative dans les spectres atomiques peuvent être atteintes soit en émission, soit en absorption. La comparaison de l'intensité de diverses raies spectrales émises à des longueurs d'onde très différentes, rencontre les difficultés inhérentes à toute mesure photométrique absolue. Quant aux études d'absorption elles nécessitent une bonne connaissance des profils de la raie d'absorption et de la source utilisée ce qui pose souvent de délicats problèmes. Cependant, cette difficulté peut être levée par l'étude de la dispersion anormale directement liée à l'absorption. Une méthode particulièrement bien adaptée à l'étude de la dispersion anormale a été proposée par Rozhdestvenskii en 1912. En effet dans la méthode des crochets, la quantité mesurée n'est ni une intensité ni un indice, mais une longueur d'onde. Cependant dans sa forme classique le champ d'application de cette méthode est limité par l'emploi des plaques photographiques qui ne sont pas de bons récepteurs dans l'infrarouge. Pour éviter cette limitation nous avons transposé la méthode de manière à pouvoir utiliser un récepteur photoélectrique. C'est cette adaptation que nous décrivons dans le présent article.

Dans le premier paragraphe nous rappelons les points essentiels de la méthode de mesure des forces d'oscillateur par l'étude de la dispersion anormale. Puis nous décrivons le montage expérimental en accordant une attention particulière à la description

et à l'exploitation du signal obtenu. Les avantages de la méthode photographique sont ensuite discutés. Enfin, nous présentons les résultats que nous avons obtenus pour quelques transitions $2p^5 3s-2p^5 3p$ du néon I. La précision de nos mesures est évaluée à 5 % ce qui est confirmé par la comparaison de nos résultats avec des valeurs obtenues par une tout autre méthode et avec le résultat de calculs théoriques particulièrement raffinés [3]-[6].

2. Principe de la méthode. — L'étude de la dispersion anormale d'une vapeur au voisinage d'une raie d'absorption permet, en principe, la détermination de la force d'oscillateur de la transition. Loin d'une raie d'absorption l'indice d'une vapeur est en effet donné par la formule de Kramers-Heisenberg [2]

$$n - 1 = \frac{e^2}{2\pi mc^2} \sum_{j>i} \left(N_j - N_i \frac{g_j}{g_i} \right) \frac{f_{ij}}{\sigma_{ij}^2 - \sigma^2}.$$

La double sommation est faite sur tous les niveaux de l'atome, classés par ordre d'énergies croissantes.

N_i est la population du niveau i , g_i sa multiplicité, σ_{ij} est le nombre d'onde de la transition entre les niveaux i et j ; f_{ij} la force d'oscillateur de cette transition.

Cette formule n'est pas valable pour les nombres d'onde tels que $|\sigma - \sigma_0|$ soit de l'ordre de la largeur γ de la raie d'absorption mais nous avons toujours travaillé dans des conditions telles que $|\sigma - \sigma_0|$ soit

supérieur à γ . Par ailleurs si l'on considère une raie d'absorption bien isolée et si tout en respectant la condition ci-dessus, on travaille au voisinage de cette raie, alors les termes dus aux autres transitions varient assez lentement pour qu'on puisse les considérer comme constants. En conséquence, si on se limite au domaine de nombres d'onde tels que

$$\gamma < |\sigma - \sigma_0| \ll \sigma$$

on peut représenter la variation de l'indice par la fonction $n(\sigma)$:

$$n(\sigma) - n_0 = \frac{e^2}{4\pi mc^2} \frac{f_{ij}}{\sigma_0 - \sigma} \left(N_i - N_j \frac{g_i}{g_j} \right).$$

On tiendrait compte de l'effet Doppler en faisant le produit de convolution de $n(\sigma)$ et d'une gaussienne de largeur $\Delta\sigma_D$ ($\Delta\sigma_D$ étant la largeur Doppler de la raie d'absorption) ; toutefois dans la région où sont faites les mesures, la variation de l'indice est assez lente sur une largeur Doppler pour qu'on puisse conserver cette forme de l'indice (dans le cas que nous avons étudié, l'erreur relative faite sur l'indice est de l'ordre de 10^{-3} à 1 cm^{-1} du centre de la raie d'absorption).

Pour étudier l'indice et ses variations nous utilisons le fait que la présence d'un gaz excité dans l'un des bras d'un Michelson éclairé en lumière blanche modifie son pouvoir de transmission. L'interféromètre est réglé de manière à donner des anneaux à l'infini dont on étudie la partie centrale. En l'absence de vapeur, on établit une différence de chemin optique x entre les deux bras de l'interféromètre. La vapeur est introduite dans le bras le plus court. Si on définit par $l/2$ l'épaisseur de vapeur traversée, la différence de chemin optique entre les deux ondes interférant au centre des anneaux est $\Delta = (n - 1)l - x$. Le pouvoir de transmission $T(\sigma)$ pour la radiation de nombres d'onde σ , au centre des anneaux est égale à

$$T_0(1 + \cos 2\pi\sigma\Delta) = T_0(1 + \cos \varphi).$$

En utilisant la formule simplifiée de l'indice et en posant

$$A = \frac{e^2 f_{ij} l}{4\pi mc^2} \left(N_i - N_j \frac{g_i}{g_j} \right) \quad \text{et} \quad x' = x - (n_0 - 1)l$$

on obtient

$$\varphi = 2\pi\sigma\Delta = 2\pi \left(\frac{A}{\sigma_0 - \sigma} - \sigma x' \right).$$

La fonction $T(\sigma)$ présente des extremums d'une part quand $\varphi = k\pi$ (k entier), d'autre part quand φ est stationnaire, c'est-à-dire lorsque $d\varphi/d\sigma = 0$.

$$\frac{d\varphi}{d\sigma} = 2\pi \left(x' - \frac{A}{(\sigma_0 - \sigma)^2} \right)$$

est nul pour σ tel que $(\sigma - \sigma_0)^2 = A/x'$.

Pour $|\sigma - \sigma_0| \gg \sqrt{A/x'}$, $T(\sigma)$ est une sinusoïde, pour les deux valeurs $\sigma_0 \pm \sqrt{A/x'}$, $T(\sigma)$ est station-

naire. Puis quand $|\sigma - \sigma_0|$ diminue, la phase varie très vite avec σ , $T(\sigma)$ se met à osciller rapidement. On étudie le pouvoir de transmission du Michelson à l'aide d'un spectromètre à haute résolution.

La mesure des nombres d'onde pour lesquels $T(\sigma)$ est stationnaire et la mesure de la période de la sinusoïde donnent accès au produit

$$\left(N_i - N_j \frac{g_i}{g_j} \right) f_{ij}$$

et dans le cas où $N_i \ll N_j$, à $N_j f_{ij}$. L'étude d'un couple de transitions, de même niveau inférieur permet de mesurer le rapport de leurs forces d'oscillateur.

3. Dispositif expérimental. — Le dispositif expérimental est schématisé dans la figure 1. On remarque qu'il est constitué essentiellement par un interféromètre de Michelson, un spectromètre à réseau et un dispositif d'asservissement et de détection. Nous décrivons successivement ces trois parties.

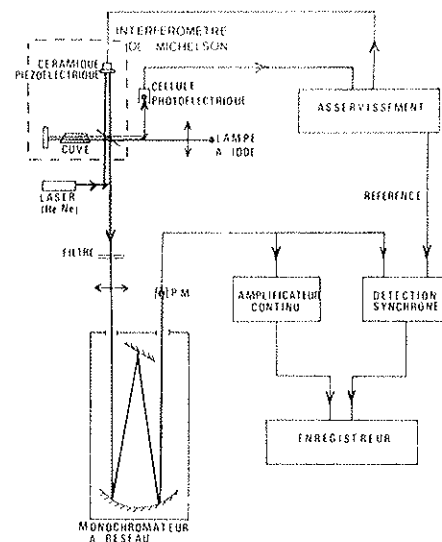


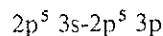
FIG. 1. — Dispositif expérimental.

3.1 INTERFÉROMÈTRE. — Nous utilisons un interféromètre de Michelson de configuration classique. Les fenêtres du tube qui contient la vapeur à étudier, taillées dans le même verre que la séparatrice ont des épaisseurs choisies de manière à jouer le rôle d'une compensatrice. Celle-ci étant imparfaitement réglée, la différence de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre dépend de la longueur d'onde. D'autre part, indépendamment de la dispersion anormale, l'indice moyen n_0 de la vapeur dépend de la raie étudiée. x' dépend donc de la longueur d'onde mais présente une variation négligeable sur les quelques Å où nous étudions l'indice au voisinage d'une transition.

L'interféromètre est éclairé en lumière blanche. La source de lumière blanche est une lampe quartz-iode, placée au foyer d'une lentille. La lampe est alimentée par un courant réglé, qui lui assure une brillance extrêmement stable.

La vapeur étudiée dans l'expérience décrite ici est du néon à une pression de quelques torr contenu dans un tube de 50 cm de long et 1 cm de diamètre. Le gaz est excité par une décharge continue ; le courant est stabilisé réglable de 0 à 30 mA.

3.2 SPECTROMÈTRE. — La lumière issue du Michelson est analysée par un spectromètre formé d'un monochromateur et d'un photomultiplicateur placé derrière la fente de sortie. Le monochromateur, de focale 2 m est équipé d'un réseau à 270 traits par mm, de 10 cm × 20 cm dont l'angle de miroitement égal à 67° correspond à $\lambda = 6 \mu$ dans le premier ordre. Les transitions visibles sont observées dans un ordre élevé ; nous utilisons une série de filtres interférentiels pour isoler la bande étudiée. Le monochromateur est équipé de fentes. Dans la direction parallèle aux fentes, l'étendue géométrique utilisée est limitée par la cuve. L'angle maximum sur l'axe du tube d'un rayon utile est 5×10^{-3} rad ce qui correspond à une variation d'ordre d'interférence d'environ 1/20 pour une différence de chemin optique de 2 mm entre les bras de l'interféromètre. Ceci ne diminue pratiquement pas le contraste du spectre cannelé et ne déforme pas la figure enregistrée. Dans la direction perpendiculaire aux fentes, l'étendue géométrique du faisceau utile est limitée par le monochromateur ; quand on augmente la résolution, on diminue le signal utile et donc le rapport signal sur bruit. Ceci nous a conduit à prendre des fentes de même largeur ($\approx 100 \mu$) ce qui correspond à une résolution d'environ 50 000. Pour que le spectre cannelé soit observable avec un bon contraste il faut alors que la différence de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre n'excède pas 4 à 5 mm. La distance des extremums est d'autant plus grande que x' est plus petit, mais pour qu'on puisse considérer la raie étudiée comme isolée il faut que les extremums restent beaucoup plus près de cette raie que des raies voisines. Afin que les effets dus aux raies voisines soient négligeables, de même que les variations de la dispersion des lames, nous n'avons pas utilisé de différence de chemin optique entre les bras de l'interféromètre inférieure à 0,1 mm. Afin d'obtenir un bon rapport signal sur bruit nous avons utilisé un photomultiplicateur à couche trialkaline, particulièrement bien adapté à l'étude des transitions



du néon I.

3.3 ASSERVISSEMENT ET DÉTECTION. — L'état d'interférence et par conséquent la différence de marche de l'interféromètre doivent être extrêmement stables. De très faibles variations de la température de l'air changent beaucoup le chemin optique. Pour compenser les variations de l'indice de l'air, nous avons réalisé un système d'asservissement de la différence de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre. Le faisceau lumineux issu d'un laser HeNe à 6 328 Å traverse l'interféromètre, le faisceau sortant du

Michelson est recueilli sur une cellule photoélectrique. Le miroir appartenant au bras qui ne contient pas la vapeur est monté sur une céramique piézo-électrique à laquelle on applique une tension alternative à une fréquence de 800 Hz qui lui donne un déplacement total de l'ordre de 3 μ . Pour asservir l'appareil sur un minimum de transmission à 6 328 Å on superpose à la tension alternative une tension continue telle que la composante à 800 Hz du signal soit annulée.

3.4 DESCRIPTION DU SIGNAL. — La lumière que reçoit le photomultiplicateur est formée du spectre cannelé dû à la lumière blanche et du spectre émis par le tube à néon. Il est nécessaire d'étudier le spectre cannelé seul. Comme les raies émises par le tube à néon sont assez intenses, les ghosts d'une raie et les pieds de la fonction d'appareil, bien que très faibles en valeur relative, perturbent beaucoup le spectre cannelé. La différence de chemin optique dans l'interféromètre est modulée, on fait une détection synchrone de cette modulation, ce qui fournit un signal proportionnel à $\sin 2\pi \left(x' \sigma + \frac{A}{\sigma - \sigma_0} \right)$ (cf. Amexé). C'est sur ce signal que nous étudions la dispersion anormale de la vapeur. Le système de rotation du réseau permet d'obtenir sur la fente de sortie du monochromateur un défilement du spectre étudié, linéaire en nombre d'onde. Nous enregistrons simultanément le signal issu de la détection synchrone et le signal continu reçu par le photomultiplicateur et amplifié. La figure 2 montre un exemple d'enregistrement. Loin d'une raie d'absorption nous obtenons une sinusoïde, puis les deux extremums ; dans la partie du spectre où la phase varie très vite (entre les extremums) la résolution devient insuffisante pour permettre d'obtenir un bon contraste, on observe, entre les extremums, l'amorce d'une sinusoïde, puis la valeur moyenne du sinus, c'est-à-dire zéro. Pour déterminer la position des extremums on utilise la propriété suivante : si pour deux nombres d'onde σ' et σ'' de part et d'autre d'un extremum la phase du sinus est la même, alors

$$(\sigma' - \sigma_0)(\sigma'' - \sigma_0) = \frac{A}{x'}$$

La partie continue du signal permet de déterminer le centre de la raie d'absorption, qui coïncide avec le centre de la raie émise par le tube.

4. Comparaison des méthodes photographique et photoélectrique. — La méthode des crochets mise en œuvre par Rozhdestvenskii en 1912 [1] est fondée sur le même principe : interféromètre à deux ondes éclairé en lumière blanche, croisé avec un spectromètre. Un des bras de l'interféromètre contient la vapeur à étudier, l'autre bras contient une lame qui introduit une différence de chemin optique entre les deux bras. On forme des franges d'interférence perpendiculaires à la fente d'entrée d'un spectrographe et on photographie le spectre. (Pour un nombre d'onde l'ordre d'inter-

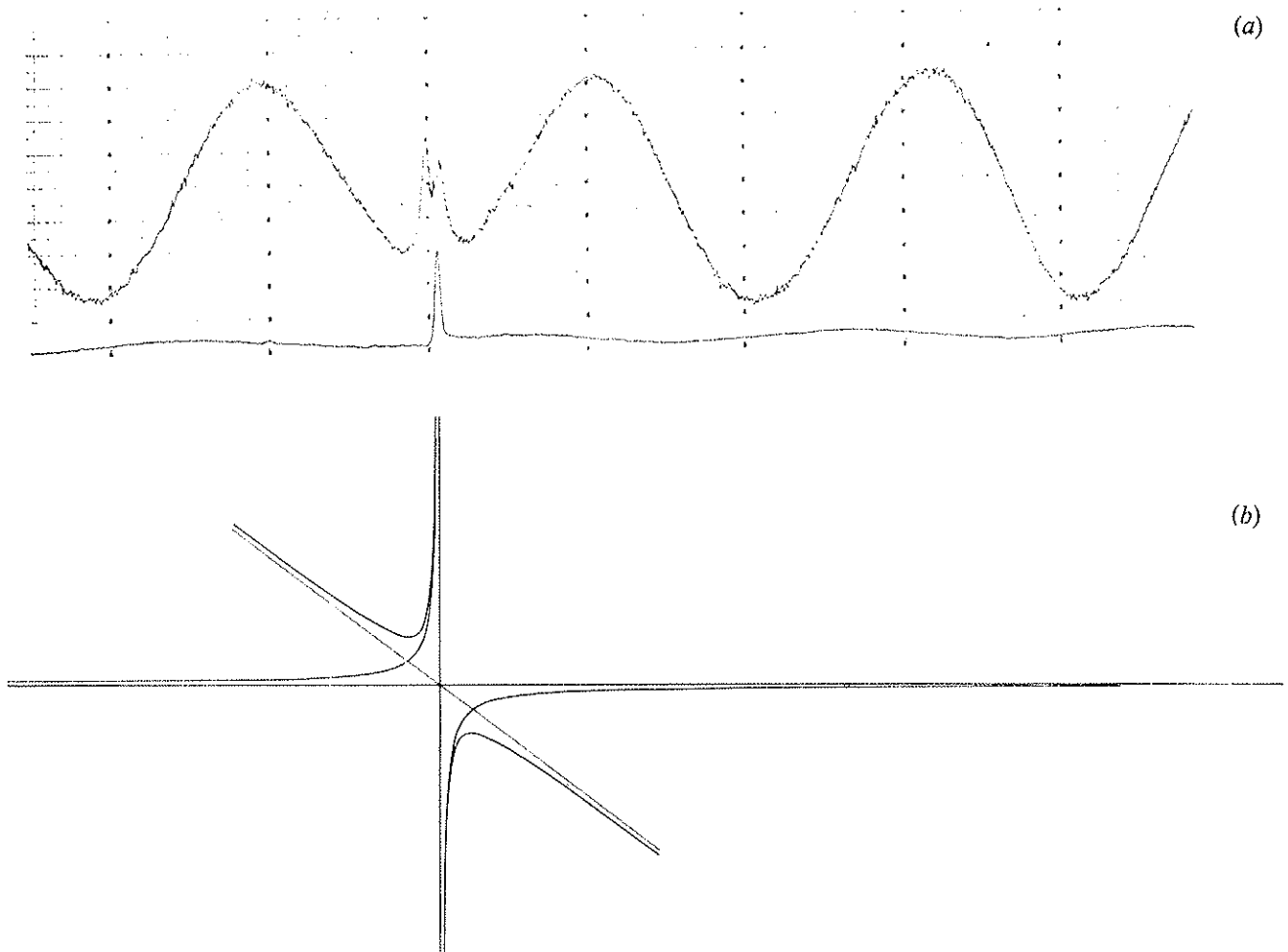


FIG. 2.

a. — Spectre cannelé au voisinage de $\lambda = 6\,096 \text{ \AA}$ (l'interfrange $1/x$, vaut 17 cm^{-1}).

b. — Variation en fonction du nombre d'onde, de l'indice de la vapeur et de la différence de chemin optique entre les deux bras de l'interféromètre dans les conditions de l'enregistrement.

férence varie linéairement le long de la fente). On obtient sur la plaque du spectrographe des courbes de même éclairement, correspondant à un même ordre d'interférence, elles sont de la forme

$$y(\sigma) = x\sigma + \frac{A}{\sigma - \sigma_0}.$$

Elles présentent des extremums traditionnellement appelés « crochets » à une distance proportionnelle à

$$\sqrt{\left(N_i - N_j \frac{g_i}{g_j}\right) f_{ij}} \text{ de la raie d'absorption.}$$

Les deux méthodes donnent accès à la même information. L'avantage des plaques photographiques est essentiellement multiplex, ce qui se manifeste sous deux formes :

- on étudie simultanément plusieurs transitions,
- pour chaque nombre d'onde on observe une variation continue de l'état d'interférence le long de la fente d'entrée du spectromètre.

Cependant le premier point est d'un intérêt limité puisque la valeur optimale de la différence de marche dans l'interféromètre n'est pas la même pour toutes les transitions et il est nécessaire de prendre plusieurs photographies avec des différences de marche différentes. De plus le second point ne sert qu'à repérer les ordres d'interférence entiers. Sur un enregistrement photoélectrique on observe un seul ordre d'interférence pour chaque nombre d'onde mais on peut choisir x' de manière que les extremums se produisent pour des valeurs du sinus proches de zéro, ce qui correspond aux meilleures conditions d'observation des extremums. L'enregistrement contient alors toutes les informations qu'on peut obtenir d'une plaque photographique.

En outre la méthode photoélectrique apporte deux améliorations supplémentaires :

- possibilité d'étudier des transitions infrarouges : il n'est pas possible actuellement de photographier des spectres pour des longueurs d'onde supérieures à

1 μ environ alors qu'il existe des cellules photo-électriques sensibles jusqu'à l'infrarouge lointain. Nous espérons atteindre des transitions que la méthode photographique ne permet pas d'étudier.

— augmentation de la précision : la précision sur la mesure de Nf donnée par Pery Thorne et Chamberlain est 12 % ; dans la méthode photoélectrique l'incertitude est réduite à 5 % (l'incertitude essentiellement due aux instabilités de l'interféromètre ne peut être que réduite dans l'infrarouge).

Les franges obtenues sur une plaque photographique sont sinusoïdales. Le principe de la mesure est tel qu'elles ne peuvent pas être rendues infiniment fines ce qui limite fondamentalement la précision avec laquelle est obtenue la courbe $y(x)$. Dans un enregistrement photoélectrique nous nous affranchissons de cette contrainte.

5. **Résultats.** — Nous avons étudié les transitions entre les configurations $2p^5 3s$ et $2p^5 3p$ du néon I. Ces transitions se situent entre 5 400 Å et 8 000 Å. Les mesures montrent que les populations des niveaux de $2p^5 3s$ observées sont de l'ordre de 10^{12} atomes par cm^3

$$\begin{aligned} s_5 & 0,9 \times 10^{12} \text{ atomes par cm}^3 \\ s_4 & 0,4 \times 10^{12} \text{ atomes par cm}^3 \\ s_3 & 0,9 \times 10^{11} \text{ atomes par cm}^3 \\ s_2 & 0,8 \times 10^{11} \text{ atomes par cm}^3. \end{aligned}$$

Les populations des quatre niveaux de $2p^5 3s$ sont du même ordre de grandeur. Deux de ces niveaux $s_5(^3P_2)$ et $s_3(^3P_0)$ sont métastables vis-à-vis des transitions dipolaires électriques alors que $s_4(^3P_1)$ et $s_2(^1P_1)$ sont liés au niveau fondamental par des transitions dipolaires électriques intenses (le couplage n'est pas purement Russell-Saunders) et doivent leur forte population à l'emprisonnement de radiation qui en résulte.

Au-delà de 20 mA les populations des niveaux de la configuration $2p^5 3s$ varient peu (quelques % entre 20 et 30 mA). Nos mesures ont été faites avec un courant de 30 mA. Nous avons vu que l'étude des extremums de la figure d'interférence de part et d'autre d'une transition σ_0 entre les niveaux i (supérieur) et j (inférieur) nous donne la valeur de $\left(N_i - N_j \frac{g_i}{g_j}\right) f_{ij}$.

Nous avons vérifié que $N_i \ll N_j$ pour les transitions étudiées. Quand le courant de décharge dans le tube passe de 20 à 30 mA l'intensité des transitions $2p^5 3s-2p^5 3p$ augmente, donc les populations des niveaux de $2p^5 3p$ augmentent ; les valeurs de A augmentent très peu et pour un couple de transitions de même niveau inférieur le rapport A_{ij}/A_{kj} ne varie pas ; ce qui nous amène à conclure que la condition $N_i \ll N_j$ est bien remplie et que nous mesurons $N_j f_{ij}$ pour chaque transition étudiée. Nous obtenons les valeurs relatives de forces d'oscillateur pour des transitions de même niveau inférieur. La valeur de Nf obtenue à partir d'un enregistrement se déduit de la mesure de 5 à

Forces de raie relatives

Transition	λ (Å)	(a)	[6]	[4]	[3]	[5]
$s_4 p_2$	5 882	0,076	0,076 4	0,206	0,132	0,072
$s_4 p_3$	5 945	0,15	0,133	0,257	0,181	0,136
$s_3 p_2$	5 576	0,021	0,022 4	—	—	0,026
$s_3 p_6$	6 143	0,32	0,358	0,474	0,370	0,370
$s_2 p_2$	6 217	0,066	0,048 4	0,142	0,102	0,048
$s_2 p_8$	6 334	0,24	0,223	0,291	0,250	0,249
$s_3 p_9$	6 492	1	1	1	1	1
$s_3 p_{10}$	7 032	0,29	0,273	0,312	0,290	0,259
$s_4 p_7$	6 020	0,14	0,093	—	—	0,089
$s_4 p_3$	6 074	0,46	0,326	0,796	0,40	0,341
$s_4 p_1$	6 096	0,64	0,511	0,90	0,613	0,527
$s_4 p_6$	6 304	0,18	0,125	—	—	0,134
$s_1 p_2$	6 382	0,62	0,615	0,732	0,709	0,612
$s_4 p_8$	6 506	1	1	1	1	1
$s_4 p_{10}$	7 243	0,26	0,254	0,425	0,394	0,250
$s_1 p_3$	6 164	0,67	0,595	0,809	0,613	0,537
$s_1 p_5$	6 766	1	1	1	1	1
$s_3 p_5$	6 533	0,54	0,476	0,670	0,610	0,481
$s_2 p_1$	5 852	0,56	0,451	—	—	0,469
$s_1 p_2$	6 599	0,66	0,555	—	—	0,570
$s_2 p_4$	6 678	1	1	—	—	1
$s_2 p_5$	6 717	0,62	0,593	—	—	0,570
$s_2 p_6$	6 929	0,87	0,858	—	—	0,811

(a) : ce travail.

10 couples de points pour chaque extremum. Nous faisons la moyenne des valeurs obtenues ; aucune ne s'écarte de plus de 5 % de la moyenne. La reproductibilité des mesures de forces de raie relatives est bien compatible avec cette incertitude. Dans le tableau nous reproduisons nos résultats ainsi que ceux obtenus par la méthode des crochets par Ladenburg (1933) [3] et Pery Thorne et Chamberlain (1963) [4]. Nous avons également reporté les valeurs mesurées en émission par Bridges et Wiese [5] ainsi que les valeurs calculées par E. Koenig [6]. Nos résultats sont en général plus proches de ceux de Ladenburg que de ceux de Pery Thorne et Chamberlain [4] et ils sont en général compatibles aussi bien avec ceux de E. Koenig [6], qu'avec ceux de Bridges et Wiese [5].

6. **Conclusion.** — Nous avons mesuré un certain nombre de valeurs de Nf correspondant à des transitions $2p^5 3s-2p^5 3p$ du spectre du néon I. Celles-ci sont de l'ordre de 10^{10} à 10^{12} cm^{-3} . Certaines transitions $2p^5 3s-2p^5 3p$ ont des forces d'oscillateur 10 à 100 fois plus faibles et ainsi nous n'avons pas été en mesure de les étudier. Pour la plupart de celles-ci nous avons observé néanmoins une déformation de la figure d'interférence mais la mesure n'a pu être faite avec une bonne précision.

Nous avons ainsi montré que la méthode des crochets photoélectrique apporte une amélioration dans la mesure des forces d'oscillateur relatives dans le visible et permet d'envisager une extension à l'étude des transitions infrarouges pour lesquelles la plaque photographique ne peut être utilisée.

Il est difficile de comparer les méthodes étudiant la dispersion anormale aux méthodes de mesures d'intensité qui ont donné de très bons résultats sur ces transitions du néon. Ces dernières sont difficiles à mettre en œuvre car elles exigent des mesures photométriques

absolues. Les mesures de dispersion anormale et d'intensité sont complémentaires puisque les forces d'oscillateur mesurées sont dans un cas relatives à un même niveau inférieur, dans l'autre cas, à un même niveau supérieur.

Remerciements. — Cette étude a été menée sous la direction du Professeur J. Brochard. Je remercie S. Liberman et J. Pinard des nombreux conseils et encouragements qu'ils m'ont prodigués tout au long de ce travail.

ANNEXE

Forme de la courbe enregistrée. — Un interféromètre de Michelson, éclairé par une source blanche contient dans l'un de ses bras la vapeur à étudier. Il est réglé de manière à former des anneaux à l'infini.

La différence de chemin optique entre les deux ondes interférant au centre des anneaux à l'infini est de la forme $x' + \frac{A}{\sigma(\sigma - \sigma_0)}$. Le pouvoir de transmission du Michelson, pour la radiation de nombre d'onde σ est :

$$T(\sigma) = T_0 \left(1 + \cos 2\pi \left(x'_0 + \delta e \cos 2\pi \nu t \right) \sigma + \frac{A}{\sigma - \sigma_0} \right)$$

où ν est la fréquence (800 Hz) de vibration du miroir mobile de l'interféromètre. La lumière est analysée par le monochromateur. L'intensité lumineuse reçue par le photomultiplicateur $T_1(\sigma)$ est le produit de convolution de $T(\sigma)$ par la fonction d'appareil du monochromateur, mais la diffraction n'intervenant pratiquement pas on a :

$$T_1(\sigma) = \frac{1}{a^2} \int_{\sigma-a/2}^{\sigma+a/2} d\sigma' \int_{\sigma'-a/2}^{\sigma'+a/2} d\sigma'' T(\sigma'')$$

a largeur spectrale déterminée par la fente du monochromateur.

Le signal issu du photomultiplicateur est envoyé à une détection synchrone à la fréquence ν qui fournit la fonction enregistrée $f(\sigma)$.

$f(\sigma)$ est proportionnelle à la composante de Fourier de $T_1(\sigma)$ à la fréquence ν , et celle-ci est obtenue à partir de la composante de Fourier de $T(\sigma)$.

COMPOSANTE DE FOURIER DE $T(\sigma)$ A FRÉQUENCE ν .

$$T(\sigma) = 1 + \cos 2\pi \left(x'_0 \sigma + \frac{A}{\sigma - \sigma_0} \right) \cos (2\pi \sigma \delta e \cos 2\pi \nu t) - \sin 2\pi \left(x'_0 \sigma + \frac{A}{\sigma - \sigma_0} \right) \sin (2\pi \sigma \delta e \cos 2\pi \nu t).$$

Le développement de Fourier de $(\cos 2\pi \nu t)^m$ ne contient un terme à la fréquence ν que si m est impair. La composante de $(\cos 2\pi \nu t)^{2n+1}$ à la fréquence ν est

$$\frac{1}{2^n} C_{2n+1}^n \cos 2\pi \nu t.$$

Seul le développement de $\sin (2\pi \sigma \delta e \cos 2\pi \nu t)$ fournira une composante à la fréquence ν :

$$\sin (2\pi \sigma \delta e \cos 2\pi \nu t) = \sum_0^{\infty} (-1)^n \frac{(2\pi \sigma \delta e \cos 2\pi \nu t)^{2n+1}}{(2n+1)!}$$

dont la composante de Fourier à la fréquence ν est

$$2 \cos 2\pi \nu t \sum_0^{\infty} (-1)^n \left(\frac{2\pi \sigma \delta e}{2} \right)^{2n+1} \times \frac{1}{n!(n+1)!}$$

c'est-à-dire $2 \cos \omega t J_1(2\pi \sigma \delta e)$.

La composante de Fourier de $T(\sigma)$ à la fréquence ν est

$$- 2 \cos 2\pi \nu t J_1(2\pi \sigma \delta e) \sin 2\pi \left(x'_0 \sigma + \frac{A}{\sigma - \sigma_0} \right).$$

Sur les quelques cm^{-1} observés au voisinage d'une raie d'absorption σ varie peu, donc J_1 varie peu ; on peut admettre que $f(\sigma)$ est proportionnelle à

$$\frac{1}{a^2} \int_{\sigma-a/2}^{\sigma+a/2} d\sigma' \int_{\sigma'-a/2}^{\sigma'+a/2} d\sigma'' \sin 2\pi \left(x'_0 \sigma'' + \frac{A}{\sigma'' - \sigma_0} \right)$$

$x'_0 \sigma \gg 1$ une très petite variation de x'_0 fait donc beaucoup changer la valeur de $\sin 2\pi \left(x'_0 \sigma + \frac{A}{\sigma - \sigma_0} \right)$ l'extremum observé est d'autant plus accusé que le sinus est voisin de zéro ; si c'est le cas, à l'extremum σ_1

$$x'_0 \sigma + \frac{A}{\sigma - \sigma_0} = x'_0 \sigma_1 + \frac{A}{\sigma_1 - \sigma_0} = \frac{\varphi_1}{2\pi}$$

et au voisinage de l'extremum

$$\sin 2\pi \left(x'_0 \sigma + \frac{A}{\sigma - \sigma_0} \right) \text{ est peu différent de } 2\pi \left(x'_0 \sigma + \frac{A}{\sigma - \sigma_0} \right) - \varphi_1$$

$f(\sigma)$ est peu différent de

$$g(\sigma) = \frac{1}{a^2} \int_{\sigma-a/2}^{\sigma+a/2} d\sigma' \int_{\sigma'-a/2}^{\sigma'+a/2} d\sigma'' \left[2\pi \left(x'_0 \sigma'' + \frac{A}{\sigma'' - \sigma_0} \right) - \varphi_1 \right]$$

$$g(\sigma) = 2\pi \left\{ x'_0 \sigma - \varphi_1 + \frac{A}{a^2} [(\sigma - \sigma_0 + a) \text{Log}(\sigma - \sigma_0 + a) + (\sigma - \sigma_0 - a) \text{Log}(\sigma - \sigma_0 - a) - 2(\sigma - \sigma_0) \text{Log}(\sigma - \sigma_0)] \right\}$$

$$g'(\sigma) = 2\pi \left[x'_0 + \frac{A}{a^2} \left(\text{Log} \frac{(\sigma - \sigma_0)^2 - a^2}{(\sigma - \sigma_0)^2} \right) \right].$$

Un développement au second ordre par rapport à $a/\sigma - \sigma_0$ donne

$$g(\sigma) \simeq 2\pi \left[x'_0 \sigma + \frac{A}{\sigma - \sigma_0} \left(1 + \frac{a^2}{6(\sigma - \sigma_0)^2} \right) \right] - \varphi_1$$

$$g'(\sigma) \simeq 2\pi \left[x'_0 - \frac{A}{(\sigma - \sigma_0)^2} \left(1 + \frac{a^2}{2(\sigma - \sigma_0)^2} \right) \right]$$

les extremums de $g(\sigma)$ se produisent pour

$$(\sigma - \sigma_0)^2 = \frac{A}{x'_0} \left(1 + \frac{a^2}{2Ax'_0} \right).$$

Ceci montre que si on analyse la figure d'interférence avec une résolution trop faible on trouvera des extremums trop éloignés et on sera conduit à surestimer Nf . L'erreur systématique ainsi introduite $\left(\frac{a^2}{2Ax'_0} \text{ en valeur relative} \right)$ est de 1 % dans le pire des cas.

Bibliographie

- [1] ROZHDESTVENSKII, D. S., *Annlu der Phys.* **39** (1912) 307.
- [2] KORFF, S. and BREIT, G., *Rev. Mod. Phys.* **4** (1932) 471.
- [3] LADENBURG, R., *Rev. Mod. Phys.* **5** (1933) 243.
- [4] PERY THORNE, A. and CHAMBERLAIN, J. E., *Proc. Phys. Soc.* **82** (1963) 133.
- [5] BRIDGES, J. M. and WIESE, W. L., *Phys. Rev.* **2** (1970) 285.
- [6] KOENIG, E., *Phys. Lett.* **34A** (1971) 284.

ANNEXE II

Measurements of line strengths in the 2-0 band of CO

M Crance and J Verges

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, 91405 Orsay, France

Received 16 April 1975, in final form 2 September 1975

Abstract. We have used a high resolution Fourier transform spectrometer to measure the band strength of the first overtone of CO by studying anomalous dispersion along the band. The value obtained is $S_{20} = 2.11 \pm 0.03 \text{ cm}^{-2} \text{ atm}^{-1}$ at 273 K.

1. Introduction

We describe an experimental measurement of molecular band strength. We studied the first overtone of CO by a method that we have previously used in the visible range for atomic lines (Crance 1973). This method is a photoelectric version of the classical hook method. The hook method is generally used to study well isolated lines; it is difficult to apply it to the measurement of line strengths in molecular bands where the lines are very close to each other (at the best 4 cm^{-1} in the 2-0 band of CO).

Several authors (Anketell and Pery Thorne 1967, Pery Thorne and Banfield 1970) have avoided this difficulty by studying the dispersion due to the whole band near the band head, but this method can only be used when the absorption of the band is very strong.

In the present work, we were able to observe anomalous dispersion of each line of the band 2-0 of CO by means of a high resolution Fourier transform spectrometer (Connes *et al* 1970). The band strength S_{20} could then be determined since the temperature and pressure of the gas were known.

We first describe the apparatus and the method of measurement, then we compare our results with previous measurements obtained by different methods.

2. Dispersion along an absorption band

Specifically, we studied the P- and R-branch transitions between the vibrational levels $v = 0$ and $v = 2$ of CO located around $4\,200 \text{ cm}^{-1}$. The Fourier transform spectrometer is particularly well adapted to work in this wavenumber range.

The absorption cell consists simply of a tube at room temperature. In these conditions the gas is in thermal equilibrium and the population of the rotational level i is proportional to $\exp(-E_i/kT)$ (E_i is the energy of the level i). At room temperature only the population of the levels of the ground vibrational state $v = 0$ have to be considered and the refractive index along the 2-0 band is due to the contribution of these transitions only.

The lines of the band 2-0 are labelled with m defined as $m = -J$ for the P transition with lower level J ($v = 0$) and $m = J + 1$ for the R transition with lower level J ($v = 0$).

In molecular studies, it is usual to introduce both the line strength $S_m(T)$ and the band strength $S_{20}(T)$ which leads to a particularly simple formula for the absorption coefficients of the band and the lines.

The band strength $S_{20}(T)$ at the temperature T is the sum of the line strengths $S_m(T)$:

$$S_{20}(T) = \sum_{m=-\infty}^{+\infty} S_m(T). \quad (1)$$

The line strength is related to the square of the dipole matrix element by

$$S_m(T) = \frac{8\pi^3 \sigma(m)}{3hc^2} |m| \frac{\exp(-E_j/kT)}{Q_R(T)} |R(m)|^2 \frac{273}{T} L_0 \quad (2)$$

where $L_0 = 2.69 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \text{ atm}^{-1}$ and $|R(m)|^2 = |R(0)|^2 F(m)$.

The line strength of the transition m is given by (Herman and Wallis 1955)

$$S_m(T) = S_{20}(T) \left(\frac{F(m)|m|\sigma(m) \exp(-E_j/kT)[1 - \exp(-hc\sigma(m)/kT)]}{\sum_m F(m)|m|\sigma(m) \exp(-E_j/kT)[1 - \exp(-hc\sigma(m)/kT)]} \right) \quad (3)$$

where $F(m)$ are the so-called Herman-Wallis coefficients, $\sigma(m)$ is the wavenumber of the transition m and E_j is the energy of the lower level of the transition m . We have used the Herman-Wallis coefficients introduced by Kunde (1967). At room temperature the term $\exp(-hc\sigma(m)/kT)$ is negligible.

Taking into account the previous assumptions, it is easy to see that the following quantity does not depend on the temperature:

$$\frac{S(T)TQ_R(T)}{\sum_m F(m)|m|\sigma(m) \exp(-E_j/RT)}$$

$Q_R(T)$ is the rotational partition function at temperature T . This relation has been used to refer our results to 273 K.

The refractive index is given by the Kramers-Heisenberg formula (Korff and Breit 1932). In terms of line strength its expression is

$$n - 1 = \frac{p}{2\pi^2} \sum_m \frac{S_m(T)}{\sigma^2(m) - \sigma^2} \quad (4)$$

where p is the pressure of the gas expressed in atm.

However, near an absorption line, this formula is no longer valid. For small values of $|\sigma - \sigma_m|$, one can replace $1/(\sigma^2(m) - \sigma^2)$ by $(\sigma(m)^2 - \sigma^2)/[(\sigma(m)^2 - \sigma^2)^2 + 4\beta^2\sigma^2]$ in formula (4) where β is the half width of the absorption line profile (Korff and Breit 1932); the approximation is valid for $|\sigma - \sigma_m|$ larger than β . Thus one obtains the formula

$$n - 1 = \frac{p}{2\pi^2} \sum_m \frac{S_m(T)(\sigma^2(m) - \sigma^2)}{(\sigma^2(m) - \sigma^2)^2 + 4\beta^2\sigma^2}. \quad (5)$$

3. Principle of the method

Figure 1 shows a block diagram of the experiment. We study the transmission of a Michelson interferometer containing the CO gas in one arm. The interferometer is illuminated with a white light from a conventional filament lamp. The shorter arm contains the gas. One mirror (as imaged by the beam splitter) is parallel to the other mirror (Crance 1973).

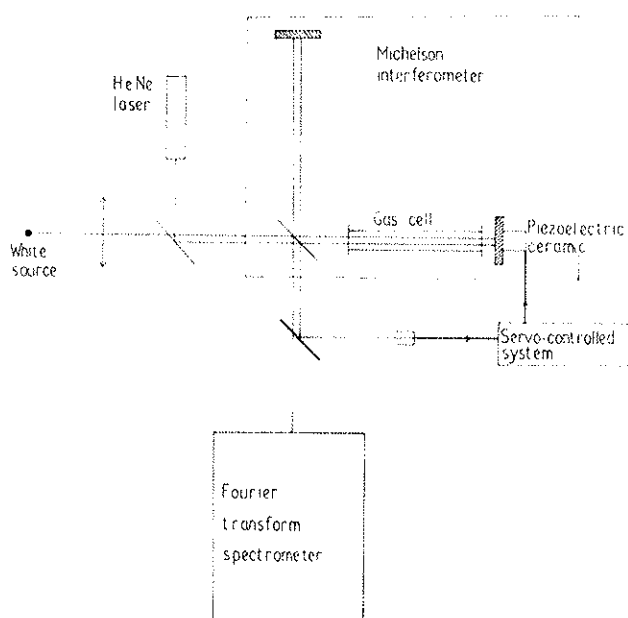


Figure 1. Block diagram of the experiment.

We use a Fourier transform spectrometer (Connes *et al* 1970) to analyse the transmission of the Michelson interferometer as a function of σ . The resolution limit is about 0.008 cm^{-1} .

The transmission of the Michelson interferometer is given by the formula

$$T(\sigma) = 1 + T_0(\sigma) + 2\sqrt{T_0(\sigma)} \cos 2\pi\sigma\Delta \quad (6)$$

where

$$\Delta = x - (n(\sigma) - 1)l. \quad (7)$$

T_0 takes into account the absorption of the CO tube and is nearly equal to unity except for wavenumbers close to each line. $n(\sigma)$ is the refractive index of the gas for the wavenumber σ , $\frac{1}{2}l$ is the length of the absorption cell and x is the optical path difference which would exist between the two arms of the Michelson interferometer if the absorption cell were empty. That is, in such a case the optical path difference Δ would be constant and the transmission would vary sinusoidally with σ .

When the cell contains the gas, the transmission is still roughly sinusoidal except in the neighbourhood of each line. The form of the refractive index of CO along the 2-0 band and the corresponding form of the transmission are shown in figure 2. Figure 2(c) shows

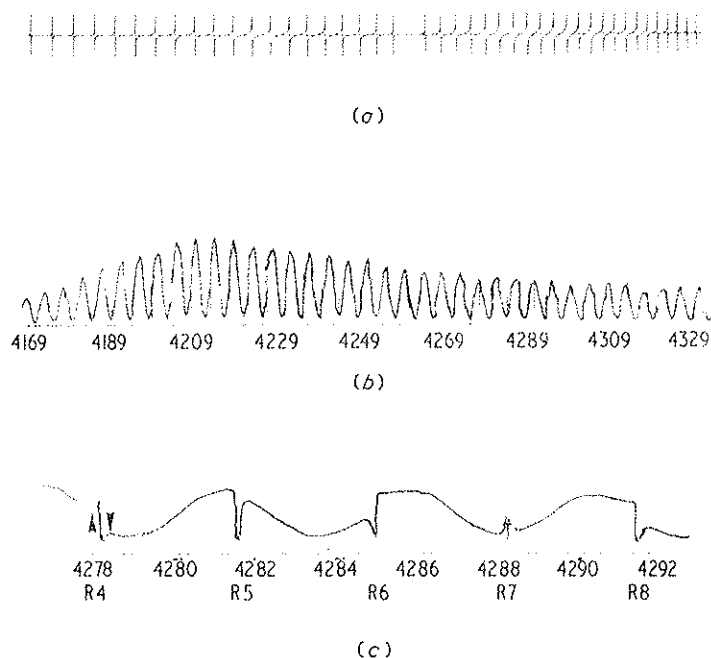


Figure 2. (a) Refractive index along the 2-0 band; (b) transmission curve along the 2-0 band; (c) transmission curve detail. The arrows mark the positions of the two extrema corresponding to the R4 line

a detail of the transmission curve for another value of x . The measurements are done on a curve where the scale of wavenumbers has been expanded.

For convenient values of x and p , near the line m , the value of $n(\sigma) - 1$ increases as $|\sigma - \sigma(m)|$ decreases. The phase of the cosine, appearing in the transmission power, $\phi = 2\pi[x - (n(\sigma) - 1)l]\sigma$ increases at the same time, until the rate of change of the refractive index is exactly compensated by the optical path difference due to x ; that happens for the σ values given by

$$x = \frac{d}{d\sigma}[(n(\sigma) - 1)l\sigma]. \quad (8)$$

After this value of σ , the phase decreases. The transmission curve presents an extremum. One extremum is obtained on each side of each line $\sigma(m)$; to give a rough indication of their positions, we simplify formula (4) by omitting contributions to $n - 1$ from other lines, ie we assume that near $\sigma(m)$

$$n - 1 = \frac{p}{4\pi^2} \frac{S_m(T)}{\sigma(\sigma(m) - \sigma)}. \quad (9)$$

We then find that the extrema fall at

$$\sigma(m) \pm \left(\frac{plS_m(T)}{4\pi^2 x} \right)^{1/2}. \quad (10)$$

The more complete expression (4) for $n - 1$ was actually used in our data analysis (see below).

4. Extraction of the data

For each extremum, we choose several pairs of points (σ'_i, σ''_i), each point of the pair corresponding to the same value of the transmission and to the same value of

$$F(S, \sigma) = \sigma[x - (n(\sigma) - 1)l]. \quad (11)$$

The variation of this function is calculated for all pairs of points and $S_{20}(T)$ is adjusted in such a way that the calculated values of $F(S, \sigma)$ for the two points of a pair are as similar as possible. More precisely we choose the value of $S_{20}(T)$ which leads to the smallest value of

$$\sum_i [F(S, \sigma'_i) - F(S, \sigma''_i)]^2.$$

A slight correction is introduced in the calculation of $F(S, \sigma'_i)$ when $(\sigma'_i - \sigma(m))$ is small, in order to take into account the effects coming from equation (5).

5. Results

Five recordings were obtained, the values of pl and x being varied in the ranges $0.5 \text{ mm} < x < 2 \text{ mm}$, $5 \text{ atm cm} < pl < 7 \text{ atm cm}$. x was measured by counting the number of fringes obtained from σ_1 to σ_2 , all the absorbing lines being between σ_1 and σ_2 ($n(\sigma_1) \simeq n(\sigma_2) \simeq 1$). The pressure of the gas was measured with a butyl phthalate manometer. The accuracy of the measurements of x and p was about 5%. The measurements were taken at 297 K and the values obtained were 1.911, 1.931, 1.950, 1.969 $\text{atm}^{-1} \text{ cm}^{-2}$, giving a mean of $S_{20}(297 \text{ K}) = 1.94 \pm 0.03 \text{ atm}^{-1} \text{ cm}^{-2}$ where the quoted error is based only on the scatter.

We compare our results with earlier data (see table I). For convenience, all the values have been referred to 273 K. Our measurement is in good agreement with recent experimental data derived by other techniques.

Table I.

Author	Method	$S_{20}(273 \text{ K})$
Matheson (1932)	Absorption	5.13
Dinsmore and Crawford (1949)	'Wilson-Wells'	2.3 ± 0.5
Penner and Weber (1951)	Self-broadening foreign gas broadening	1.82 ± 0.09
Armstrong and Welsh (1965)	Self-broadening	1.78 ± 0.05
Breeze and Ferriso (1965)	Shock-tube emission	2.3 ± 0.3
Shurin and Ellis (1966)	Self-broadening	2.15 ± 0.10
Kork <i>et al</i> (1968)	Equivalent width of absorption	2.06 ± 0.07
Bouanich and Brodbeck (1974)	Absorption	1.95 ± 0.10
Present work	Hook method	2.11 ± 0.03

6. Conclusion

Among the numerous advantages presented by the hook method, compared with those involving emission or absorption, the most important is that it avoids the problem of calibrating light intensity. The precision of the results is thereby significantly increased.

So far as we know, the hook method has hitherto been used only in the visible region with a low resolution spectrometer. The new technique brings to this type of investigation all the improvements that the photoelectric method in general and Fourier transform spectroscopy in particular have brought to infrared studies.

As we have already explained, the main difficulty encountered in the molecular band studies results from the small distance between the lines. In the 2-0 band of CO the distance between two successive lines is about 3 to 4 cm^{-1} , thus the experimental conditions are rather comfortable, but in this case we were far from the limitation of the method. We have not actually exhausted the possibilities for use of our Fourier transform spectrometer, because it is possible to reach a resolution limit of 0.0025 cm^{-1} by increasing the optical path difference in the Fourier transform spectrometer. Our method can be used if there is a wavenumber range between two lines where the formula (6) is valid, the absorption being strong enough. In other words the distance between two lines must be larger than the linewidths. Under these assumptions one can think that it would be possible to study numerous molecular bands by using the photoelectric hook method associated with a Fourier transform spectrometer.

Acknowledgments

We are grateful to Professor Barchewitz for a useful informative discussion and to Professor Stacey for helpful criticism of the manuscript.

References

- Anketell J and Pery Thorne A 1967 *Proc. R. Soc. A* **301** 343-53
Armstrong R L and Welsh H L 1965 *Can. J. Phys.* **43** 547-56
Bouanich J P and Brodbeck C 1974 *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer* **14** 1199-208
Breeze J C and Ferriso C C 1965 *J. Chem. Phys.* **43** 3253-8
Connes J, Delouis H, Connes C, Guelachvili G, Maillard J P and Michel G 1970 *Nouv. Rev. Opt. Appl.* **1** 3-22
Crance M 1973 *Rev. Phys. Appl.* **8** 325-31
Dinsmore H L and Crawford B L Jr 1949 *University of Minnesota Report NR 019-104*
Herman R and Wallis R 1955 *J. Chem. Phys.* **23** 637-46
Korb C L, Hunt R H and Plyler E K 1968 *J. Chem. Phys.* **48** 4252-60
Korff S A and Breit G 1932 *Rev. Mod. Phys.* **4** 471-503
Kunde V G 1967 *Tables of Theoretical Line Positions and Intensities for the $\Delta v = 1$, $\Delta v = 2$ and $\Delta v = 3$ Vibration Rotation Bands of $C^{12}O^{16}$ and $C^{13}O^{16}$* (Greenbelt, Maryland: Goddard Space Flight Centre)
Matheson L A 1932 *Phys. Rev.* **40** 813-28
Penner S S and Weber D 1951 *J. Chem. Phys.* **19** 807-16
Pery Thorne A and Banfield F P 1970 *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* **3** 1011-9
Shurin B and Ellis R E 1966 *J. Chem. Phys.* **45** 2528-32

ANNEXE III

A new method for measuring relative oscillator strengths using a CW dye laser

M Crance, P Juncar and J Pinard

Laboratoire Aimé Cotton, CNRS II, Bâtiment 505, 91405-Orsay, France

Received 22 January 1975, in final form 25 June 1975

Abstract. We describe a new method for measuring relative oscillator strengths. The basic idea is the same as in the classical hook method, ie we study anomalous dispersion of a vapour in the neighbourhood of an absorption line by using a two-beam interferometer. The improvement consists in measuring directly the optical path difference as a phase. Therefore in principle we can get very precise values of relative oscillator strengths, provided that the analysis of the transmission is performed with a sufficiently high resolving power. In order to solve this problem, we have studied the two transitions $1s_5-2p_6$ and $1s_5-2p_4$ of Ne I. We have obtained for the ratio of oscillator strengths $(f_{1s_5-2p_6})/(f_{1s_5-2p_4}) = 2.60 \pm 0.15$.

1. Introduction

A photoelectric version of the classical Rozhdesivenskii (1912) hook method has been recently achieved (Crance 1973). In that method, the variation of refractive index near an absorption line is measured through the variation of the transmission of an interferometer which contains the gas under study. The refractive index appears in the argument of a cosine. The object of this paper is to present a new experiment based essentially on the same principles but giving directly the argument of the cosine by measuring the optical path difference of the interfering waves. Both in the hook method and in our previous experiment, only measurements of wavenumber variations are done. In the new method, the variation of refractive index is extracted from phase measurements.

The possibility of getting more precise measurements has led us to use a monomode tunable dye laser in which the wavenumbers are defined with a better precision than with a white-light source combined with a classical monochromator.

As a test, we have applied this method to study two of the $2p^53s-2p^53p$ transitions in Ne I ($1s_5-2p_6$ at 6143 Å and $1s_5-2p_4$ at 5945 Å). For these transitions many measurements have been done in the past and recent precise calculations are available. The results are in good agreement with the data obtained by emission and with the calculations of Koenig (1971). The precision is higher than in previous results obtained by the hook method. The improvement in precision is essentially due to the change in the detection system of refractive index variations and to the use of a monomode tunable laser as a light source.

Firstly, we recall the principles of the measurement of relative oscillator strengths by using anomalous dispersion. Then we describe the apparatus and we explain the analysis of the experimental data. Finally we present the results that we have obtained.

2. Relation between oscillator strength and refractive index

The refractive index of a collection of atoms is given by the Kramers–Heisenberg formula (Korff and Breit 1932):

$$n - 1 = \frac{e^2}{2\pi mc^2} \sum_{j>i} \left(N_i - N_j \frac{g_i}{g_j} \right) \frac{f_{ij}}{\sigma_{ij}^2 - \sigma^2}. \quad (1)$$

The sum runs over all the levels of the atom. N_i is the population of level i , g_i being its statistical weight; σ_{ij} is the wavenumber of the transition $i \rightarrow j$, f_{ij} is the oscillator strength of this transition.

Near an isolated line σ_{ij} , provided that $|\sigma - \sigma_{ij}| \ll \sigma$, $n(\sigma)$ is given by the simplified formula:

$$n(\sigma) - n_0 = \frac{e^2}{4\pi mc^2 \sigma} \frac{f_{ij}}{\sigma_{ij} - \sigma} \left(N_i - N_j \frac{g_i}{g_j} \right) \quad (2)$$

where n_0 is not σ -dependent.

It is then possible to measure $(N_i - N_j(g_i/g_j))f_{ij}$ by studying anomalous dispersion near the transition σ_{ij} . If $N_i \gg N_j(g_i/g_j)$, one can get a measurement of the relative oscillator strength (f_{ij}/f_{ik}) by studying two transitions σ_{ij} and σ_{ik} starting from the same lower level.

In our previous work on Ne I, we have shown that these conditions are satisfied for the experimental conditions that we have realized.

3. Apparatus and method

Figure 1 shows a block diagram of the experiment. The apparatus consists of a mono-mode tunable dye laser, illuminating a Michelson interferometer which contains the gas under study, and two electronic systems. One of them ensures the stability of the interferometer, the other one extracts the signals which are applied to a pen recorder and an oscilloscope.

The Michelson interferometer is adjusted in such a manner that the image of one mirror through the beam splitter is parallel to the other mirror. The shorter arm contains the absorbing gas under study, the other one contains an eighth-wave plate.

The light beam which enters the interferometer is linearly polarized at 45° to the plate axis. The two polarizations parallel and perpendicular to the plate axis are separated at the output of the interferometer by two crossed polarizers P_1 and P_2 and each of them falls on a photomultiplier (PM_1 and PM_2 respectively).

Thus the two crossed polarizations give respectively the optical path difference Δ and $\Delta + 1/4\sigma$, thus the transmission of the interferometer is respectively:

$$\mathcal{T}_x = \frac{1}{4}(1 + T(\sigma) + 2\sqrt{T(\sigma)} \sin 2\pi\sigma\Delta)$$

and

$$\mathcal{T}_y = \frac{1}{4}(1 + T(\sigma) + 2\sqrt{T(\sigma)} \cos 2\pi\sigma\Delta), \quad (3)$$

in which $T(\sigma)$ is the transmission of the gas cell and Δ the optical path difference defined as

$$\Delta = x' - (n(\sigma) - 1)l, \quad (4)$$

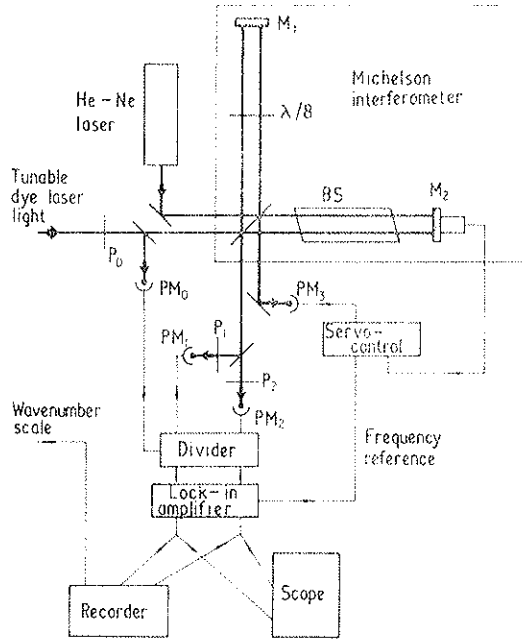


Figure 1. Block diagram of the experiment. M_1 , M_2 mirrors; BS beam splitter; P_0 , P_1 , P_2 polarizers; PM_0 , PM_1 , PM_2 , PM_3 photomultipliers.

where $n(\sigma)$ is the refractive index of the gas, $\frac{1}{2}l$ is the length of the cell and x' is the difference in length between the two arms of the interferometer.

One of the two mirrors is mounted on a piezoelectric ceramic. A 800 Hz alternating voltage is applied on it. Thus the light signals received by the photomultipliers PM_1 and PM_2 have 800 Hz components proportional to $I(\sigma)\sqrt{T(\sigma)} \cos 2\pi\sigma\Delta$ and $I(\sigma)\sqrt{T(\sigma)} \sin 2\pi\sigma\Delta$ respectively ($I(\sigma)$ is the light intensity of the dye laser beam).

The stability of the interferometer is maintained by a servo-controlled system using, as a reference, the transmission of the interferometer for the line $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ of a He-Ne laser beam. A similar electronic system is described in Crance (1973).

A third photomultiplier PM_0 looking at the intensity of the dye laser gives a signal proportional to $I(\sigma)$. The two 800 Hz components and this third signal are sent to a divider which provides two signals proportional to:

$$\begin{aligned} X &= \sqrt{T(\sigma)} \cos 2\pi\sigma\Delta \\ Y &= \sqrt{T(\sigma)} \sin 2\pi\sigma\Delta. \end{aligned} \tag{5}$$

Thus the intensity fluctuations of the source are partially eliminated.

Finally the two signals X and Y are simultaneously applied to the two channels of a recorder and to the horizontal and vertical plates of an oscilloscope; thus we obtain on the screen a point, the azimuth of which is $2\pi\sigma\Delta$. This is, in fact, the simplest and most illustrative way to visualize the transformation of cosine and sine into phase data.

Therefore, when the wavenumber σ is scanned, we obtain directly the variation of $\sigma\Delta$ as a function of σ by measuring the azimuth of the point without the usual distortions which are due to the fluctuations of the light intensity.

4. Description of the signals and measurements

As has been shown in Crance (1973), the optical path difference in the neighbourhood of the line σ_0 can be expressed as:

$$\Delta = \frac{1}{\sigma} \left(\sigma x + \frac{A}{\sigma - \sigma_0} \right) \quad (6)$$

with $x = x' - (n_0 - 1)l$.

$$A = \frac{e^2 f_{ij} l}{4\pi m c^2} N_i \quad (7)$$

$$\sigma_0 = \sigma_{ij}.$$

When we vary the wavenumber of the light emitted by the dye laser, we obtain on the same recording, the variations of the X and Y signals and a wavenumber scale, provided by an external set-up which allows one to measure wavenumbers by an interferometric method. (In fact, the tunable dye laser is driven by an electronic system, using a Michelson interferometer as a length reference. This system allows us both to stabilize the frequency light and to scan it by steps of 0.00025 cm^{-1} over a full range of about 0.7 cm^{-1} located anywhere in the utilization range of the dye laser (Pinard 1975).)

As the wavenumber of the dye laser is scanned from one side to the other side of the line under study the shape of the oscilloscope trace changes as follows:

(i) Starting with low values of σ compared with σ_0 , as long as $\sigma \ll \sigma_0$ (ie well 'outside' the line), the spot describes a circle with a constant angular speed.

(ii) As σ comes close to the value $\sigma_0 - \sqrt{A/x}$, the angular speed decreases.

(iii) When $\sigma = \sigma_0 - \sqrt{A/x}$, the direction of rotation of the oscilloscope spot changes. If the absorption is negligible, the spot appears to be reflected, and in any case, for convenience we shall call this point the reflection point.

(iv) As soon as σ is a little larger than $\sigma_0 - \sqrt{A/x}$ the spot describes a part of a circle in the opposite direction.

(v) When σ comes close to σ_0 the light is absorbed in the cell, the angular speed increases and the spot describes a spiral, which ends in the centre of the first circle when the light is completely absorbed. These characteristics are shown in figure 2.

(vi) For $\sigma > \sigma_0$ this behaviour is followed in reverse, the curve being symmetrical about σ_0 . A second reflection point is thus obtained for $\sigma = \sigma_0 + \sqrt{A/x}$. These two reflection points correspond to extrema of X and Y on the recording. They are the equivalent of the hooks in the Rozhdestvenskii method.

We can describe the curve obtained on the oscilloscope screen by the two equivalent systems of equations: either

$$\begin{aligned} X &= \sqrt{T} \cos 2\pi\sigma\Delta \\ Y &= \sqrt{T} \sin 2\pi\sigma\Delta \end{aligned} \quad \text{or} \quad \begin{aligned} \rho &= \sqrt{T} \\ \phi &= 2\pi\sigma\Delta. \end{aligned} \quad (8)$$

The reflection points occur for $d\phi/d\sigma = 0$, ie

$$x + l \frac{d}{d\sigma} [(n-1)\sigma] = 0. \quad (9)$$

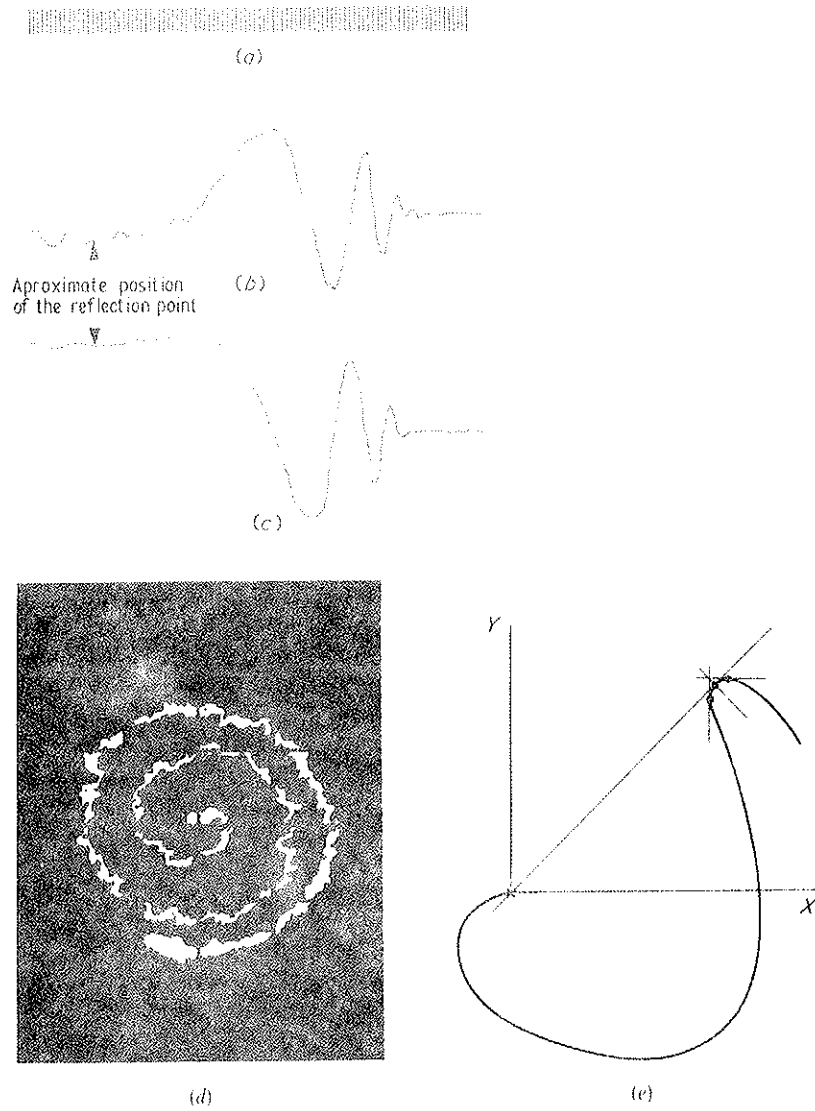


Figure 2. This figure presents the records which we obtain for the 6143 Å line when the wavenumber is scanned from σ_1 ($\sigma_1 < \sigma_0 - \sqrt{A/x}$) to σ_0 . (a) wavenumber scale; (b) Y variation; (c) X variation; (d) photograph of the shape drawn on the screen of the oscilloscope; (e) sketch of the shape drawn on the screen of the oscilloscope.

The extrema of X and Y occur respectively for $dX/d\sigma = 0$ and $dY/d\sigma = 0$.

$$\frac{dX}{d\sigma} = -\sqrt{T} \sin \phi \frac{d\phi}{d\sigma} - \cos \phi \frac{1}{2\sqrt{T}} \frac{dT}{d\sigma}$$

$$\frac{dY}{d\sigma} = \sqrt{T} \cos \phi \frac{d\phi}{d\sigma} - \sin \phi \frac{1}{2\sqrt{T}} \frac{dT}{d\sigma}$$
(10)

When the gas does not absorb $T = 1$ and $dT/d\sigma = 0$, the extrema of X and Y and the reflection point appear for the same value of σ . But if the gas absorbs, it is obvious

that these phenomena appear for three different values of σ , corresponding to the contact of the horizontal, vertical and radial tangents (see figure 2(e)). Nevertheless only the values of σ corresponding to the reflection points are always given by $d\phi/d\sigma = 0$ that is $x + l d[(n-1)\sigma]/d\sigma = 0$.

The angular coordinate of the oscilloscope spot is defined since we choose an origin, ie

$$\phi(\sigma) = 2\pi \left((\sigma - \sigma_0)x + \frac{A}{\sigma - \sigma_0} \right). \quad (11)$$

Then the angular coordinates of the reflection points are

$$\begin{aligned} \phi(\sigma_0 - \sqrt{A/x}) &= -4\pi\sqrt{Ax} \\ \phi(\sigma_0 + \sqrt{A/x}) &= 4\pi\sqrt{Ax}. \end{aligned} \quad (12)$$

On the curve drawn on the oscilloscope screen we measure the angle θ_0 ($0 < \theta_0 < 2\pi$) on the circle, between the two points of reflection we obtain the equation

$$8\pi\sqrt{Ax} = \theta_0 + 2k\pi \quad (13)$$

where k and x are unknown. As we wish to determine x , we measure the difference of wavenumbers $\Delta\sigma = \sigma_2 - \sigma_1$ between the positions $\phi(\sigma_1)$ and $\phi(\sigma_2)$ of the spot, σ_1 and σ_2 being far from the line σ_0 , on the same side. If σ_1 and σ_2 were very far from the line, assuming that the equation (6) is valid, we would obtain x as $[\phi(\sigma_2) - \phi(\sigma_1)]/(\sigma_2 - \sigma_1)$, but when σ is too far from σ_0 , we can no longer suppose that n_0 is constant, that is the reason why we choose σ_1 and σ_2 in the immediate neighbourhood of the line σ_0 and then we express $\phi(\sigma_1)$ and $\phi(\sigma_2)$ by

$$\begin{aligned} \phi(\sigma_1) &= 2\pi \left((\sigma_1 - \sigma_0)x + \frac{A}{\sigma_1 - \sigma_0} \right) \\ \phi(\sigma_2) &= 2\pi \left((\sigma_2 - \sigma_0)x + \frac{A}{\sigma_2 - \sigma_0} \right). \end{aligned} \quad (14)$$

We also have at our disposal the recordings of X and Y on which we can measure the wavenumber difference between the extrema of the cosine and the sine signals; one is larger than $2\sqrt{A/x}$, the other is smaller. This gives a rough estimate of $2\sqrt{A/x}$.

We are now able to determine A using the following procedure. We fix k and obtain

$$Ax = \left(\frac{\theta_0 + 2k\pi}{8\pi} \right)^2. \quad (15)$$

This value is introduced in the two equations:

$$\begin{aligned} [(\sigma_1 - \sigma_0)x]^2 - \frac{\phi(\sigma_1)}{2\pi}(\sigma_1 - \sigma_0)x + Ax &= 0 \\ [(\sigma_2 - \sigma_0)x]^2 - \frac{\phi(\sigma_2)}{2\pi}(\sigma_2 - \sigma_0)x + Ax &= 0 \end{aligned} \quad (16)$$

from which we obtain $(\sigma_1 - \sigma_0)x$ and $(\sigma_2 - \sigma_0)x$ and calculate x by

$$x = \frac{(\sigma_2 - \sigma_0)x - (\sigma_1 - \sigma_0)x}{\sigma_2 - \sigma_1}$$

The corresponding value of $2\sqrt{A/x}$ is compared with our rough estimate. The correct value of k is the one which makes similar these two quantities. k is then determined without ambiguity.

5. Mixture of isotopes

The results that we have derived in the previous section are valid only if the absorption line of the gas under study is well isolated from any other one. This condition is not very well satisfied if one uses natural neon, since the abundances of the various isotopes are:

neon 20,	90.92%
neon 21,	0.26%
neon 22,	8.82%

and the isotope shifts between the components of neon 20 and neon 22 are 0.0554 cm^{-1} for the line at 6143 \AA and 0.0572 cm^{-1} for the line at 5945 \AA (Odintsov 1965).

Therefore to get simpler results we have utilized an enriched sample of ^{20}Ne .

However we have also performed an experiment with natural neon. With a mixture of isotopes a good approximation consists in considering the refractive index and the absorption coefficient as a sum of terms coming from the different isotopes. The shape drawn by the spot on the oscilloscope is not symmetrical. However, if the distance between the two reflection points is larger than a few linewidths, it is possible to deduce the value of Nf from the angular positions. Figure 3 shows the curves obtained with natural neon and ^{20}Ne in analogous conditions of pressure and excitation. The shape of the curve is very sensitive to the presence of an isotopic component, but in fact, the correction to the value of Nf is very small (0.5%).

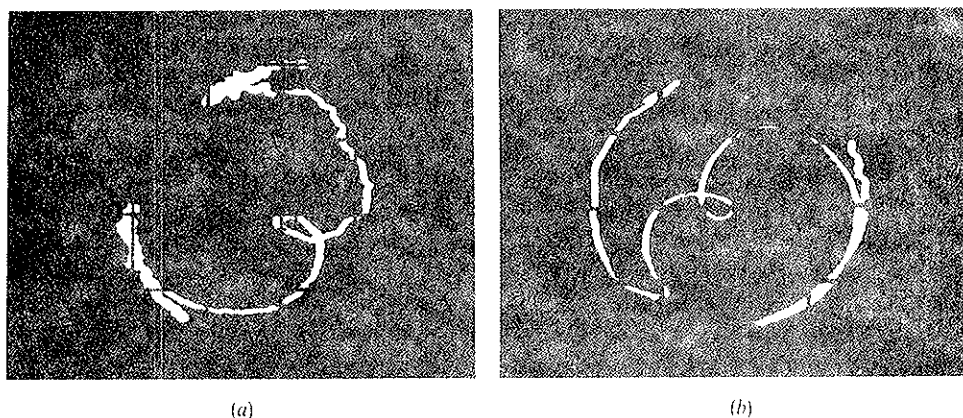


Figure 3. Curves obtained for the 5945 \AA line when the wavenumber is scanned from σ_1 to σ_2 ($\sigma_1 < \sigma_0 - \sqrt{A/x}$, $\sigma_2 > \sigma_0 + \sqrt{A/x}$). (a) With a sample enriched in neon 20; (b) with a sample of natural neon.

6. Results

We have studied two transitions $2p^53s-2p^53p$ of Ne I: $1s_5-2p_6$ at 6143 Å and $1s_5-2p_4$ at 5945 Å when the gas is excited by a high voltage discharge. The current is 20 mA, the pressure is a few torrs.

The precision depends on the definition of the spot on the screen of the oscilloscope. For the particular results reported here we estimate an uncertainty of about 3%. We compare our value of f_{6143}/f_{5945} with the values already available in the literature.

Our present measurements	2.60 ± 0.15
Our previous measurements (Crance 1973)	2.13 ± 0.2
Pery Thorne and Chamberlain (1963) (hook method)	1.84 ± 0.4
Ladenburg (1933) (hook method)	2.04 ± 0.4
Bridges and Wiese (1970) (emission)	2.72 ± 0.5
Koenig (1971) (calculated)	2.69

Our present result is in good agreement with the emission measurements of Bridges and Wiese and with the rather sophisticated calculations of Koenig.

One can remark that all the values obtained by the hook method are smaller than the values obtained both by calculations and emission experiment. A simple calculation shows that the use of a spectrometer with too low resolution leads one to over-estimate the values of A . This effect is most important for the lines with small values of Nf . This sort of error leads one to underestimate a ratio such as f_{6143}/f_{5945} . One can suppose that this effect is an explanation of the discrepancy between the various results. The use of a monomode laser allows us to avoid this error.

7. Conclusion

The new method that we present here is still based on the principle of the Rozhdestvenskii method which consists in comparing the optical path difference due to the variation of a refractive index to that due to a geometrical asymmetry of an interferometer.

In the classical method, and in the photoelectric method (Crance 1973) that we have already realized, the difference of wavenumbers between the two extrema is measured and compared with the distance of the fringes far from the line under study.

In this new method, we measure the variation of the phase between the two extrema. The determination of the wavenumbers for which the extrema occur leads only to a rough estimate which allows us to choose the whole number of revolutions. Then we avoid the difficult problem of determining the position of the extremum of an asymmetrical curve. With the previous method, it is quite impossible to study the anomalous dispersion when the gas absorbs: on the photographic plates, the contrast of the fringes decreases—on the photoelectric recording the position of the extrema depend on the variation of the gas absorption. In the present method, the position of the reflecting points depends only on the value of the refractive index, even if the light is slightly absorbed.

In this new method, the variation of refractive index is measured through a phase variation instead of an intensity variation. The precision on the phase measurement is, in principle, much better than the precision on an intensity measurement.

Our preliminary results already show an improvement in the precision but, in fact, it will be possible to improve again this precision by an electronic treatment of the signals.

References

- Bridges J M and Wiese W L 1970 *Phys. Rev. A* **2** 285-93
Crance M 1973 *Rev. Phys. Appl.* **8** 325-31
Koenig E 1971 *Phys. Lett.* **34A** 284-6
Korff S and Breit G 1932 *Rev. Mod. Phys.* **4** 471-503
Ladenburg R 1933 *Rev. Mod. Phys.* **5** 243-56
Odintsov V I 1965 *Opt. Spectrosc.* **18** 205-6
Pery Thorne A and Chamberlain J E 1963 *Proc. Phys. Soc.* **82** 133-41
Pinard J 1975 *Opt. Commun.* to be published
Rozhdestvenskii D S 1912 *Ann. Phys., Lpz* **39** 307-45

**Service de Reprographie
C . N . R . S .
Gif**