



HAL
open science

Pompage optique avec un laser : théorie non-perturbative et étude expérimentale de la réponse non-linéaire dans le cas du néon

Martial Ducloy

► **To cite this version:**

Martial Ducloy. Pompage optique avec un laser : théorie non-perturbative et étude expérimentale de la réponse non-linéaire dans le cas du néon. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1973. Français. NNT: . tel-00011818

HAL Id: tel-00011818

<https://theses.hal.science/tel-00011818>

Submitted on 8 Mar 2006

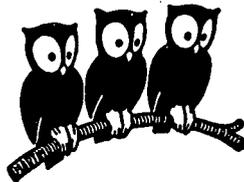
HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ DE PARIS

N° d'enregistrement
au C.N.R.S.
n° A.O.9381

LABORATOIRE DE PHYSIQUE
DE L'ÉCOLE NORMALE
SUPÉRIEURE



THESE DE DOCTORAT D'ETAT ES SCIENCES PHYSIQUES

présentée

A L'UNIVERSITE PARIS VI

par

Martial D U C L O Y

pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences

Sujet de la thèse : "POMPAGE OPTIQUE AVEC UN LASER : THEORIE
NON-PERTURBATIVE ET ETUDE EXPERIMENTALE DE
LA REPONSE NON-LINEAIRE DANS LE CAS DU NEON"

soutenue le 19 Décembre 1973 devant la Commission d'Examen :

MM. J. BROSSEL	}	Président	
P. JACQUINOT		}	
P.E. TOSCHEK			
C. COHEN-TANNOUJJI			
B. DECOMPS			
M. DUMONT			
		Examineurs	

N° d'enregistrement
au C.N.R.S.

A.O. 9381

THESE DE DOCTORAT D'ETAT
ES SCIENCES PHYSIQUES

présentée

A L'UNIVERSITE PARIS VI

par

Martial D U C L O Y

pour obtenir

le grade de Docteur ès Sciences

Sujet de la thèse : "POMPAGE OPTIQUE AVEC UN LASER :
THEORIE NON-PERTURBATIVE ET ETUDE EXPERIMENTALE
DE LA REPOSE NON-LINEAIRE DANS LE CAS DU NEON"

soutenue le 19 Décembre 1973 devant la Commission d'Examen :

MM. J. BROSSEL	}	Président
P. JACQUINOT		Examineurs
P.E. TOSCHEK		
C. COHEN-TANNOUJJI		
B. DECOMPS		
M. DUMONT		

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Physique de l'Ecole Normale Supérieure au cours des années 1970 - 1973. Je remercie sincèrement MM. les Professeurs A. KASTLER et J. BROSSEL de m'avoir accueilli dans leur groupe de recherches.

Cette étude est le prolongement des travaux sur le pompage laser entrepris par B. DECOMPS et M. DUMONT et a bénéficié d'un grand nombre de leurs résultats expérimentaux. Je les remercie vivement pour m'avoir initié aux techniques des lasers à gaz et pour avoir suivi de près l'évolution de ce travail, malgré les importantes responsabilités qu'ils ont été appelés à assumer à Saint-Denis.

Ce travail a été réalisé parallèlement à celui entrepris par Elisabeth GIACOBINO sur le néon 21 et a bénéficié de nombreuses discussions que nous avons eues. Je la remercie ici pour l'aide qu'elle m'a si souvent apportée sur tous les plans.

Je remercie aussi C. COHEN-TANNOUJDI pour les fructueuses discussions que nous avons eues, ainsi que pour sa lecture critique du manuscrit.

Jean DATCHARY et Marie-Pascale GORZA ont réalisé une partie des expériences qui sont décrites ici. Je leur exprime toute ma gratitude pour leur contribution importante à cette étude.

En plus du travail administratif qu'elles exécutent quotidiennement, Madame C. EMO pour la partie théorique, et Mademoiselle I. BRODSCHI pour la partie expérimentale, ont assuré avec amabilité et compétence la frappe d'un texte souvent ingrat. Qu'elles trouvent ici l'expression de ma reconnaissance.

• I N T R O D U C T I O N •

I - HISTORIQUE DU POMPAGE LASER

Le remplacement dans les expériences de pompage optique [1] des lampes conventionnelles par une source laser a d'abord été proposé par JAVAN [2] en 1964. La grande densité d'énergie lumineuse émise par les lasers permet d'étendre aux niveaux excités des atomes les expériences de pompage optique réalisées sur le niveau fondamental. La technique la plus simple pour obtenir la coïncidence optique entre la fréquence laser et la fréquence de la transition atomique était d'utiliser les mêmes atomes dans le laser et dans la cellule de pompage. C'est pour cette raison que les premières expériences utilisent un laser Hélium-Néon pour pomper des atomes de néon [3] ou un laser à xénon pour pomper des atomes de xénon [4].

Par la suite, ces expériences ont été étendues aux molécules pour lesquelles le spectre très riche a permis de trouver des coïncidences accidentelles entre les raies d'émission des lasers ioniques (Argon ou Krypton) et les raies de résonance de Na_2 [5] et I_2 [6]. Enfin, les récents progrès observés dans le domaine des lasers à fréquence accordable (laser à colorant) vont permettre d'étendre les expériences de pompage laser à des niveaux atomiques ou moléculaires quelconques. C'est ainsi qu'une excitation en deux échelons (lampe conventionnelle + laser à colorant) a permis d'étudier quelques niveaux excités du césium et du rubidium [7] et qu'a pu être réalisé, dans une décharge électrique, le pompage optique de niveaux excités du néon par un laser à colorant opérant en continu [8].

II - CARACTERISTIQUES DU POMPAGE LASER

L'analyse de la lumière de fluorescence émise par des atomes excités pompés optiquement par un faisceau laser polarisé permet un grand nombre d'études expérimentales. Ces expériences peuvent être interprétées à l'aide d'un développement de perturbations de la réponse du milieu atomique en fonction des puissances successives du champ électrique de l'onde laser, comme l'ont fait B. DECOMPS [9] et M. DUMONT [10].

Le pompage laser permet d'abord de réaliser des expériences semblables à celles réalisées dans le pompage optique usuel : effet Hanle [3], résonance magnétique [11], croisement de niveaux de structure hyperfine [12], etc... Ces effets

apparaissent dans la réponse linéaire du milieu atomique - linéaire par rapport à l'intensité laser (deuxième ordre de perturbations) - et ne mettent pas en jeu les propriétés spécifiques de l'onde laser. Ces propriétés apparaissent dans d'autres expériences utilisant soit la grande intensité du faisceau laser, soit sa cohérence temporelle. La forte densité lumineuse de l'onde laser permet d'induire des effets non-linéaires comme la "résonance de saturation" en champ magnétique nul [13][14] qui apparaît sur les populations des niveaux, au quatrième ordre dans un développement de perturbations. Par ailleurs, la cohérence de l'onde laser est responsable de l'apparition sur la fluorescence de modulations aux fréquences de battements entre modes [10]. Contrairement à cet effet qui est linéaire, les "résonances de saturation" en champ fort [10][15], qui sont observées chaque fois que la fréquence de Larmor est égale à une des fréquences de battements, sont dues à la fois à la cohérence et à la forte intensité lumineuse.

Le calcul de la réponse atomique développé au quatrième ordre de perturbations permet d'interpréter ces effets expérimentaux et de donner leur origine physique. Il est particulièrement bien adapté aux expériences mettant en jeu la cohérence de l'onde laser : il explique en particulier l'effet de la phase relative des modes sur l'amplitude des résonances de saturation et donne la position de ces résonances [15]. Cependant la méthode de perturbations ne convient pas à une étude quantitative de la réponse non linéaire pour plusieurs raisons :

- (i) Le quatrième ordre de perturbations ne permet pas d'interpréter un certain nombre de résultats obtenus à forte intensité laser, comme l'observation sur la fluorescence d'un moment hexadécapolaire induit dans le milieu atomique [16], ou le signe de certaines résonances de saturation [14]. Ces effets n'apparaissent qu'au sixième ordre dans un développement de perturbations : le calcul de ces ordres élevés est très complexe et, de plus, on peut se demander s'il a un sens car il y a de grandes chances pour qu'à forte intensité, la série de perturbations ne soit plus convergente.
- (ii) Même à faible intensité laser, le calcul de perturbations ne peut fournir les formes de raie exactes. Par exemple, il ne permet pas d'obtenir l'expression de l'élargissement radiatif de l'effet Hanle [9] ainsi que celle du déplacement radiatif de la raie de résonance magnétique [11]. Dans ces effets où interfèrent phénomènes linéaires et non linéaires, toute mesure spectroscopique nécessite une extrapolation à intensité de laser nulle. En général, les grandeurs à

extrapoler ne varient pas linéairement avec l'intensité d'irradiation. L'extrapolation peut alors être à la source d'erreurs de mesure. Nous verrons en particulier que ceci explique un désaccord entre des mesures de DECOMPS [9] et de DUMONT [10]. Il est donc préférable de connaître l'allure exacte des variations des grandeurs physiques avec l'intensité laser.

Pour ces différentes raisons, il nous est apparu nécessaire de développer une étude théorique qui ne soit fondée sur un développement de perturbations et qui soit valable à des intensités laser arbitraires.

III - THEORIE NON-PERTURBATIVE

Pour résoudre les équations d'évolution du système atomique à l'aide d'une méthode non-perturbative, nous devons faire quelques approximations. La principale consiste à assimiler le pompage optique par un faisceau laser multimode à un pompage en raie large [17] (*). Ceci est vrai lorsque le faisceau laser comporte un grand nombre de modes proches. Dans ce cas, la largeur du trou [18] "brûlé" par un mode dans la répartition de vitesse des atomes excités - largeur qui est donnée par l'inverse du temps de relaxation du dipôle optique de la transition - est supérieure à l'écart entre ces trous - écart proportionnel à la différence de fréquence des modes - et donc les différents trous se recouvrent. Si de plus la largeur spectrale de l'onde laser est supérieure à la largeur Doppler de la raie atomique, tous les atomes interagissent avec le laser, quelle que soit leur vitesse. La réponse des

(*)

Nous supposons par ailleurs l'irradiation laser résonnante et nous utilisons en conséquence l'approximation séculaire ("rotating wave approximation") qui consiste à négliger dans la réponse du milieu atomique les composantes évoluant à des fréquences optiques non résonnantes (cette approximation revient à négliger les contributions de l'ordre de Γ/ω où Γ est la largeur naturelle du niveau excité et ω la fréquence de résonance atomique). De cette façon, nous ne prenons en considération que les transitions optiques qui sont résonnantes ou quasi-résonnantes et nous éliminons les transitions à plusieurs photons dans lesquelles le système passe par un ou plusieurs états intermédiaires virtuels. Pour que ces transitions apparaissent, il faudrait que le champ électrique de l'onde laser soit du même ordre de grandeur que les champs atomiques, c'est-à-dire que l'élargissement radiatif des niveaux atomiques devienne comparable à leur énergie.

atomes est indépendante de leur vitesse. Il n'y a pas de corrélation entre l'état interne ("orientation" atomique) et l'état externe des atomes (répartition des vitesses) et on peut écrire la matrice densité du milieu atomique sous la forme :

$$\rho(\vec{v}) = \bar{\rho} \cdot W_M(\vec{v})$$

où $W_M(\vec{v})$ est la répartition de Maxwell des vitesses atomiques et $\bar{\rho}$ décrit l'état interne des atomes. Cet état interne est régi par un système d'équations couplant les différentes composantes de $\bar{\rho}$ et valable pour des intensités laser arbitraires. Dans ces équations, le laser n'apparaît que par l'intermédiaire d'un seul paramètre, γ , proportionnel à l'intensité laser, et qui peut être interprété comme la probabilité de transitions induites par l'irradiation lumineuse.

Le système d'équations décrit aussi bien la composante continue de la réponse du milieu atomique que les modulations induites aux fréquences de battement entre modes. Nous nous sommes surtout intéressés à la réponse en champ magnétique faible (champ de l'ordre de quelques dizaines de gauss suffisant pour décrire l'effet Hanle des niveaux excités). Dans ce cas, les modulations de la matrice densité sont hors résonance et donc négligeables devant la composante continue. Les équations du mouvement ont été entièrement résolues dans le cas où le laser possède une polarisation linéaire σ et est résonnant pour une transition atomique b ($J_b = 1 \rightarrow a$ ($J_a = 0, 1$ ou 2)). On a pu déterminer ainsi les différentes caractéristiques de la réponse non linéaire du milieu atomique : élargissement radiatif de l'effet Hanle, résonance de saturation en champ nul sur les populations des niveaux, création de cohérence Zeeman d'ordre élevé.

Les résultats principaux sont les suivants :

- Pour une transition $J_b = 1 - J_a = 0$, l'effet Hanle du niveau b garde une forme Lorentzienne, indépendamment de l'intensité du laser. Par ailleurs, les populations des deux niveaux a et b présentent une résonance de saturation en champ nul ayant la même forme que l'effet Hanle.
- Pour une transition $J_b = 1 - J_a = 1$, les effets Hanle des deux niveaux ont aussi une forme de Lorentz avec une bonne approximation, car le couplage induit par le laser entre les alignements transversaux de a et b est en général négligeable. Par ailleurs, les résonances de saturation apparaissant sur les populations sont formées de deux contributions respectivement proportionnelles à l'effet Hanle de a et à celui de b .

• Pour une transition $J_b = 1 - J_a = 2$, alors que l'effet Hanle du niveau a est Lorentzien pour toutes les intensités laser accessibles, celui du niveau b présente à forte intensité une déviation par rapport à une forme de Lorentz qui est due au couplage de l'alignement de b avec l'alignement de a (effet non-linéaire du 4ème ordre) et avec le moment hexadécapolaire de a (effet du 6ème ordre). Par ailleurs, la résonance de saturation a approximativement la forme de l'effet Hanle de a. Sur la raie de fluorescence $J_a = 2 \rightarrow J_f = 2$, l'amplitude de cette résonance de saturation présente un comportement anormal -renversement de saturation à forte intensité laser- qui est lié à des effets non-linéaires d'ordre élevé (ordre 6 et plus).

IV - PLAN DU MEMOIRE

La première partie du présent mémoire reproduit deux articles consacrés à l'étude théorique que nous venons de présenter. Le premier article (I) a été publié dans la "Physical Review" [17] sans les annexes que nous avons ajoutées ici. Le second article (II) est en cours de publication.

La seconde partie présente les vérifications expérimentales effectuées sur le néon. Nous avons étudié la réponse -linéaire et non linéaire- d'une décharge de néon à diverses irradiations laser résonnantes. Nous résumons ci-après les divers résultats.

Pour une transition $J = 1 - J = 0$, les divers effets prédits par la théorie ont été observés sur les transitions $2s_2 - 2p_1$ ($\lambda = 1,52 \mu$) et $3s_2 - 2p_1$ ($\lambda = 7305 \text{ \AA}$). L'élargissement radiatif de l'effet Hanle a permis de déterminer le taux de pompage, γ , des différentes raies laser. La largeur extrapolée à intensité laser nulle donne le temps de relaxation de l'alignement du niveau. Dans le cas du niveau $3s_2$, cette extrapolation s'avère difficile car d'une part l'élargissement radiatif ne varie pas linéairement avec γ , d'autre part γ n'est pas proportionnel à l'intensité laser, à cause des variations de section du faisceau. Nous montrons en particulier que c'est une erreur d'extrapolation qui est à l'origine d'un désaccord entre les mesures de DECOMPS [9] et DUMONT [10]. Par ailleurs, le temps de relaxation du niveau $2p_1$ ($J = 0$) a été obtenu à partir de l'amplitude de la résonance de saturation. Enfin nous analysons l'effet de la diffusion multiple des raies de résonance sur la réponse non-linéaire du milieu atomique.

Les prédictions théoriques pour une transition $J = 1 - J = 1$ ont été vérifiées sur la transition $3s_2 - 2p_2$ ($\lambda = 6401 \text{ \AA}$) :

- ▣ Forme Lorentzienne des effets Hanle
- ▣ Similitude de leurs élargissements radiatifs
- ▣ Forme de raie de la résonance de saturation

Les conditions de la création -en plus du dipôle optique de la transition d'un moment quadrupolaire optique aux fortes intensités d'irradiation sont étudiées à la lumière des résultats expérimentaux.

L'étude d'une transition $J = 1 - J = 2$, qui fournit les traits les plus originaux du pompage laser, a été réalisée avec les raies $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ ($3s_2 - 2p_4$) et $\lambda = 1,15 \mu$ ($2s_2 - 2p_4$). Dans le cas d'une irradiation à 6328 \AA , nous avons pu mettre en évidence la création dans le niveau $2p_4$ d'un moment hexadécapolaire à partir de la forme de raie de l'effet Hanle du niveau $3s_2$. Nous discutons à ce propos de la possibilité de mesurer le temps de relaxation hexadécapolaire du niveau $2p_4$ à partir du taux d'anisotropie de la fluorescence du niveau $3s_2$. Par ailleurs, pour des irradiations laser à 6328 \AA ou $1,15 \mu$, nous avons observé sur la fluorescence à 5944 \AA ($2p_4 \rightarrow 1s_5$) le renversement de la résonance de saturation à forte intensité laser. Il a été possible de mettre en évidence que, comme prédit par la théorie, ce renversement est accentué lorsque la durée de vie du niveau $J = 1$ (ici $3s_2$ ou $2s_2$) est plus longue, car cet effet est essentiellement lié au temps de passage de l'atome dans ce niveau.

Enfin, la conclusion de ce mémoire est consacrée aux différents prolongements théoriques et expérimentaux de ce travail.

BIBLIOGRAPHIE DE L'INTRODUCTION

- [¹] J. BROUSSEL et A. KASTLER : C.R.A.S. 229, 1213 (1949)
A. KASTLER : J. de Phys. Rad. 11, 255 (1950)
J. BROUSSEL : Thèse, Paris 1951; Ann. de Phys. 7, 622 (1952)
- [²] A. JAVAN : Bull. Am. Phys. Soc. 9, 489 (1964)
- [³] R.H. CORDOVER, A. SZÖKE et A. JAVAN : Bull. Am. Phys. Soc. 9, 490 (1964)
R.L. FORK, L.E. HARGROVE et M.A. POLLACK : Phys. Rev. Lett. 12, 705 (1964)
T. HÄNSCH et P. TOSCHEK : Phys. Lett. 22, 150 (1966)
B. DECOMPS et M. DUMONT : C.R.A.S. 262B, 1004 (1966)
- [⁴] M. TSUKAKOSHI et K. SHIMODA : J. Phys. Soc. Jap. 26, 758 (1969)
- [⁵] M. McCLINTOCK, W. DEMTRODER et R.N. ZARE : J. Chem. Phys. 51, 5509 (1969)
- [⁶] M. BROYER, J. VIGUÉ et J.C. LEHMANN : C.R.A.S. 273B, 289 (1971)
- [⁷] S. SVANBERG, P. TSEKERIS et W. HAPPER : Phys. Rev. Lett. 30, 817 (1973)
- [⁸] E. GIACOBINO : Communication privée
- [⁹] B. DECOMPS : Thèse, Paris (1969)
- [¹⁰] M. DUMONT : Thèse, Paris (1971)
- [¹¹] E. GIACOBINO : C.R.A.S. 276B, 535 (1973)
- [¹²] E. GIACOBINO : Opt. Commun. 8, 154 (1973)
- [¹³] M. DUCLOY : Opt. Commun. 3, 205 (1971)
- [¹⁴] M.P. GORZA, B. DECOMPS et M. DUCLOY : Opt. Commun. 8, 323 (1973)
- [¹⁵] M. DUMONT : J. de Phys. 33, 971 (1972)
- [¹⁶] M. DUCLOY, M.P. GORZA et B. DECOMPS : Opt. Commun. 8, 21 (1973)
- [¹⁷] M. DUCLOY : Phys. Rev. A8, 1844 (1973)
- [¹⁸] W.R. BENNETT Jr. : Phys. Rev. 126, 580 (1962)

■ A ■ ETUDE THEORIQUE DU POMPAGE LASER ■

Article I

— T H E O R I E G E N E R A L E —
THEORETICAL GENERAL

PLAN DE L'ARTICLE I

I - INTRODUCTION	p. 1
II - EQUATIONS D'EVOLUTION	p. 2
A) Hypothèses de base	p. 3
B) Equations d'évolution de la matrice densité	p. 4
C) Régime stationnaire	p. 9
III - APPROXIMATION "BROAD-LINE"	p.12
A) Conditions de l'approximation "Broad-Line"	p.12
B) Equations d'évolution dans l'approximation "Broad-Line"	p.14
C) Cas des modes désynchronisés	p.16
D) Interprétation physique de l'approximation "Broad-Line"	p.17
IV - POLARISATION LINEAIRE	p.21
A) polarisation π	p.22
B) polarisation σ	p.24
V - POLARISATION QUELCONQUE	p.30
VI - CONDITION DE VALIDITE DES APPROXIMATIONS	p.31
A) Transitions atomiques	p.31
B) Transitions moléculaires	p.34
VII - CONCLUSION	p.35
APPENDICE A : Onde stationnaire	p.37
APPENDICE B : Largeur spectrale finie	p.43
APPENDICE C : Analogie avec le pompage optique conventionnel	p.46
APPENDICE D : Couplage des cohérences optiques dû à l'effet Zeeman anormal	p.48

NON LINEAR EFFECTS IN OPTICAL PUMPING OF ATOMS
BY A HIGH INTENSITY MULTIMODE GAS LASER

I- GENERAL THEORY

Martial DUCLOY

Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole
Normale Supérieure, Associé au Centre National de la Recherche
Scientifique, 75231 PARIS CEDEX 05, France

Abstract :

The optical pumping of atoms by a multimode gas laser, in presence of a magnetic field, is theoretically studied. The atoms are described by their density matrix, which is expanded on an irreducible tensorial set. The atomic relaxation is assumed to be isotropic. In order to avoid the usual perturbation theory, we use the so-called "Broad Line Approximation" (BLA). BLA is valid when the width of the "Bernett hole" created by one laser mode in the velocity distribution of the excited atoms is comparable to the spacing between modes; in these conditions, the atomic response does not depend on the velocity and the multimode laser irradiation is equivalent to a broad-line excitation.

For the atomic system, BLA leads to a set of coupled equations which is valid at arbitrary intensities of the laser field and which depend on this field through a unique parameter, γ . This parameter can be understood as a laser-induced transition probability.

In this article, we analyse the nonlinear effects which can be deduced from this theory, for any value of the angular momenta involved in

the laser transition : Hanle effect broadening, alignments coupling, saturation resonances on the populations are shown off. The exact calculations, valid at arbitrary laser intensities for $J=I \leftrightarrow J=0$, $J=I \leftrightarrow J=I$ and $J=I \leftrightarrow J=2$ transitions, and the corresponding experimental results will be presented in forthcoming papers.

I- INTRODUCTION

The development of gas lasers has opened a new field of experiments in atomic physics. In particular, the study of the fluorescent light from atomic levels optically pumped with a laser beam and submitted to a magnetic field, has allowed the measurement of relaxation times, collision cross-sections [1] [2], Landé g factors, [3][4][5]..... Recently, these experiments have been extended to some molecular levels [6][7].

The theoretical interpretation of these experiments has been developed by M. DUMONT and B. DECOMPS [8]. The laser field was described classically and its effects on the atoms were calculated by a perturbation development up to the second order. M. TSUKAKOSHI and K. SHIMODA [2] extended a similar treatment up to the fourth order, taking into account the first non linear effects. Recently M. DUMONT [4][5] has developed a theoretical study up to the fourth order, taking into account the atomic relaxation processes by means of a more sophisticated model : disorienting collisions, velocity diffusion by collisions and by trapping of fluorescence lines This theory gives a good explanation for the behaviour of certain non-linear effects observed on the levels populations, particularly the effect of mode locking [4]. However this theory is not well adjusted to the study of the "Hanle effect" shape (magnetic depolarization of the levels), and it fails at high laser intensities : One must take into account the higher orders and furthermore, it is not sure that the perturbation development is always convergent. In recent publications, [9] several authors have studied the monomode laser operation by a method which is not based upon a perturbation development. They have shown that, at high intensities, the exact solution is different from the one obtained by perturbation theory.

The aim of this paper is to study the optical pumping of atomic

levels by a multimode gas laser through a non-perturbative method. The equations of motion of the atomic system, which are set up in the second section of this article, are simplified by means of some approximations. These approximations and their physical meaning are analysed in the third section. Applications to a linearly polarized laser (section IV) and to a general polarization (section V) are considered. The solution for any value of the angular momenta of the levels is studied using a perturbation expansion. In section VI, we analyse the experimental conditions which ensure the validity of the approximations, and subsequently we discuss the limits of the results deduced from this theory. In following papers, exact calculations (valid at all orders in the laser field) and experimental results for small J values ($J=0, 1, 2$) will be presented.

II- EQUATIONS OF MOTION

We consider a gas of atoms having two levels, b and a , of energies W_b and W_a (figure 1). Every level has a Zeeman structure completely determined by its angular momentum J_β and its Landé factor g_β ($\beta = a$ or b). The atoms are excited by a discharge which populates all the levels ; they are irradiated by a laser beam resonant for the b - a transition and submitted to a magnetic field. The system is studied by means of the intensity and the polarization of the fluorescent light emitted from the b and a levels. The fluorescence from level β can be expressed as a function of the different components of the density matrix of β , ρ_β . This function depends on the polarization of the fluorescence line (see [8][10]). As our detection set-up does not resolve the spectral shape of the lines, we have only to determine the velocity averaged density matrix.

$$\bar{\rho}_\beta(r,t) = \int \rho_\beta(v,r,t) \cdot dv \quad (I-1)$$

A. Basic assumptions

Most of the starting hypotheses are the same as those of M. DUMONT [4] [5]. They will be shortly recalled with the same notations as those of ref. [4]. The atomic system will be described by its density matrix, ρ . ρ consists of four submatrices :

$$\rho = \begin{pmatrix} b^\rho & ba^\rho \\ ab^\rho & a^\rho \end{pmatrix} \quad (I-2)$$

ab^ρ and ba^ρ represent the "optical coherences" between a and b. They evolve at optical frequencies. a^ρ represents the sublevels populations and the Zeeman coherence for the β level. As M. DUMONT [4], we describe the density matrix evolution by a Boltzmann - type equation :

$$\dot{\rho} = \left(\frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial r} \right) \rho(v, r, t) = -i[\mathcal{H}(v, r, t), \rho(v, r, t)] + \Lambda(v) + \left[\frac{d}{dt} \rho(v, r, t) \right]_{\text{relax.}} + \left[\frac{d}{dt} \rho(v, r, t) \right]_{\text{tr.}} \quad (I-3)$$

v and r are respectively the projections of the velocity and of the position of the atom on the laser axis [11].

- \mathcal{H} is the atomic hamiltonian

- Λ represents the excitation of the atoms by the discharge

- $\left[\frac{d}{dt} \rho \right]_{\text{tr.}}$ represents the couplings by spontaneous emission from b to a. [12]
 - $\left[\frac{d}{dt} \rho \right]_{\text{relax.}}$ contains all the relaxation processes

1°) The density matrix ρ

Due to the symmetry of the various interactions, it is more convenient to develop the density matrix on a set of irreducible tensors [13][14]

$$\alpha\beta^\rho(v, r, t) = \sum_{k, q} \alpha\beta^{\rho k}_{q} (v, r, t) \cdot \alpha\beta^T_{q(k)} \quad (I-4)$$

with

$$\alpha\beta^{\rho k}_{q} = \text{Tr} \left(\rho \cdot \alpha\beta^T_{q(k)+} \right) \quad (I-5)$$

2°) The excitation matrix $\Lambda(v)$

The discharge is assumed to be isotropic and homogeneous ; it

introduces only a global population in the atomic levels. The velocity distribution is assumed to be Maxwellian, independently of the internal state :

$$\Lambda(v) = W_M(v) [\lambda_a \cdot a T_0^{(0)} + \lambda_b \cdot b T_0^{(0)}] \quad (I-6)$$

$$W_M(v) = (u\sqrt{\pi})^{-1} \cdot \exp(-v^2/u^2)$$

u is the mean quadratic velocity.

3°) The Hamiltonian \mathcal{H}

\mathcal{H} consists of three parts

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_Z + R(r,t) \quad (I-7)$$

\mathcal{H}_0 is the free atom Hamiltonian

$$\mathcal{H}_0 = \sum_{\beta=a,b} W_\beta \sqrt{2J_\beta + 1} \beta T_0^{(0)} \quad (I-8)$$

\mathcal{H}_Z is the Zeeman Hamiltonian.

$$\mathcal{H}_Z = \sum_{\beta=a,b} \omega_\beta \left[\frac{J_\beta (J_\beta + 1) (2J_\beta + 1)}{3} \right]^{1/2} \beta T_0^{(1)} \quad (I-9)$$

The quantization axis is assumed to be parallel to the magnetic field H .

$\omega_\beta = -(g_\beta \cdot \mu_B \cdot H)$ is the β Zeeman splitting ($\mu_B =$ Bohr magneton)

$R(r,t)$ is the Hamiltonian of interaction with the laser beam.

$$R(r,t) = - \vec{P} \cdot \vec{E}(r,t) = - \sum_q (-)^q P_q \cdot E_{-q} \quad (I-10)$$

\vec{P} is the electric dipole operator and \vec{E} is the laser electric field. P_q and E_q are the standard components of \vec{P} and \vec{E} :

$$P_q = \frac{P_{ab}}{\sqrt{3}} \left[ab T_q^{(1)} + (-)^J a^{-J} b \cdot ba T_q^{(1)} \right] \quad (I-11)$$

(The reduced matrix element P_{ab} is made real by means of a convenient choice of the relative phase of states a and b)

The laser consists of several modes

$$\vec{E}(r,t) = \sum_{\mu} \left[\vec{\mathcal{E}}^{\mu} \cdot e^{-i(\omega_{\mu}t - k_{\mu}r)} + \vec{\mathcal{E}}^{\mu*} \cdot e^{i(\omega_{\mu}t - k_{\mu}r)} \right] \quad (\text{I-12})$$

We assume the modes to have the same polarization, \vec{e} [15]

$$\vec{\mathcal{E}}^{\mu} = \mathcal{E}^{\mu} \cdot \vec{e} = |\mathcal{E}^{\mu}| \cdot e^{i\phi_{\mu}} \cdot \vec{e} \quad (\text{I-13})$$

$$\vec{E} = \mathcal{E} \vec{e} + \mathcal{E}^* \cdot \vec{e}^* \quad (\text{I-14})$$

with

$$\mathcal{E} = \sum_{\mu=1}^N \mathcal{E}^{\mu} \cdot e^{-i(\omega_{\mu}t - k_{\mu}r)} \quad (\text{I-15})$$

$|\mathcal{E}^{\mu}|$ and ϕ_{μ} are the amplitude and phase of the μ mode. N is the number of modes.

Lastly, we assume the laser beam to be a travelling wave : k_{μ} is always positive. We shall consider the standing wave case in appendix A.

4°) The relaxation processes

They have been analysed by M. DUMONT in a detailed manner . [4]

Following him, we assume the relaxation to be isotropic [13] and we use the "strong collision" model [16] for velocity changes due to collisions or trapping of fluorescence lines (no speed memory).

$$\left(\frac{d}{dt} \beta \rho_q^k(v,r,t) \right)_{\text{rel.}} = -\Gamma'_{\beta}(k) \cdot \beta \rho_q^k(v,r,t) + \gamma'_{\beta}(k) \cdot W_M(v) \cdot \bar{\rho}_q^k(r,t) \quad (\text{I-16})$$

where $\bar{\rho}_q^k$ is defined by I-1 and $W_M(v)$ by I-6. $\Gamma'_{\beta}(k)$ is the k -tensor relaxation rate due either to the destruction of the tensorial quantity or to the velocity change of the atom. $\gamma'_{\beta}(k)$ is the restoration rate from any other velocity. The relaxation rates of the velocity averaged density matrix, $\beta \bar{\rho}$, are given by

$$\Gamma_{\beta}(k) = \Gamma'_{\beta}(k) - \gamma'_{\beta}(k) \quad (\text{I-17})$$

In equation I-16, any coupling between different positions is ignored. This approximation is valid if the trapping of the fluorescence lines is either inexistent or complete, i.e. if the mean free path of a fluorescence photon is either large or small compared to the laser beam diameter. If the mean free path is of the order of the beam diameter, the coupling between distant positions cannot be ignored [17]. This case will be considered in the forthcoming paper.

For the optical coherence, we shall neglect the velocity changes :

$$\left(\frac{d}{dt} \rho_{ab}^k(v,r,t) \right)_{\text{rel.}} = - \Gamma_{ab}(k) \cdot \rho_{ab}^k(v,r,t) \quad (\text{I-18})$$

Indeed, on the one hand, the velocity changes due to fluorescence trapping do not restore optical coherence ; on the other hand, P. BERMAN and W.E. LAMB [18] have shown that there is no velocity-changing collision for the optical coherence if the scattering potentials are different in the a and b levels (a highly likely situation) : in this case, it is not possible to define a classical trajectory for ρ_{ab} , because the velocity changes are different in the a and b states.

$\Gamma_{ab}(k)$ possibly has an imaginary part which corresponds to a frequency shift of the optical transition. In general, this shift is much smaller than the collision broadening [19][20] and we shall neglect it. These two last assumptions are not very important for the velocity averaged density matrix in levels a and b : the existence of ρ_{ab} velocity changes or of a collision-induced frequency shift would have little weight on the final results.

5°) The transfer by spontaneous emission

The transfer by spontaneous emission from b to a has the spherical symmetry. It is expressed by means of a 6J coefficient [12] :

$$\left(\frac{d}{dt} \rho_{a'q}^k\right)_{tr} = \Theta(b, a, k) \rho_{bQ}^k = (-)^{J_a + J_b + k + 1} \gamma_{ba} \cdot (2J_b + 1) \begin{Bmatrix} k & J_b & J_b \\ 1 & J_a & J_a \end{Bmatrix} \cdot \rho_{bQ}^k \quad (I-19)$$

γ_{ba} is the $b \rightarrow a$ transition probability.

B. Density matrix equations

With the help of the previous assumptions, we can write I-3 as a set of equations coupling the ρ tensorial components. We use the well-known rotating wave approximation : in ${}_a\rho$ and ${}_b\rho$, the optical frequencies components are neglected, and, in ${}_{ab}\rho$, only the optical frequencies components are kept.

After some algebra, the following equations are obtained :

$$\begin{aligned} {}_a\dot{\rho}_Q^k = & - [iQ\omega_a + \Gamma'_a(k)] \cdot {}_a\rho_Q^k + \gamma'_a(k) \cdot W_M(v) \cdot {}_a\bar{\rho}_Q^k + \Theta(b, a, k) \cdot \rho_{bQ}^k \\ & + iP_{ab} \sum_{k'Q'q} (-)^{k+k'} \cdot q_{GQ'Q}^{k'k} \cdot \left[e_{-q} \cdot \mathcal{E} \cdot {}_{ab}\rho_{Q'}^{k'} + (-)^{k+k'+Q} \cdot e_q^* \cdot \mathcal{E}^* \cdot {}_{ab}\rho_{-Q'}^{k'*} \right] \quad (I-20a) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} {}_b\dot{\rho}_Q^k = & - [iQ\omega_b + \Gamma'_b(k)] \cdot {}_b\rho_Q^k + \gamma'_b(k) \cdot W_M(v) \cdot {}_b\bar{\rho}_Q^k \\ & + iP_{ab} \sum_{k'Q'q} q_{GQ'Q}^{k'k} \cdot \left[e_{-q} \cdot \mathcal{E} \cdot {}_{ab}\rho_{Q'}^{k'} + (-)^{k+k'+Q} \cdot e_q^* \cdot \mathcal{E}^* \cdot {}_{ab}\rho_{-Q'}^{k'*} \right] \quad (I-20b) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} {}_{ab}\dot{\rho}_{Q'}^{k'} = & - \left[i \left(\frac{\omega_a + \omega_b}{2} Q' - \omega \right) + \Gamma_{ab}(k') \right] \cdot {}_{ab}\rho_{Q'}^{k'} \\ & - i \frac{\omega_a - \omega_b}{2} \cdot \left[Q' \cdot \frac{J_a(J_a+1) - J_b(J_b+1)}{k'(k'+1)} \cdot {}_{ab}\rho_{Q'}^{k'+a(k')} \cdot {}_{ab}\rho_{Q'}^{k'-1+a(k'+1)} \cdot {}_{ab}\rho_{Q'}^{k'+1} \right] \end{aligned}$$

$$+ iP_{ab} \mathcal{E}^* \sum_{k''Q''q'} e_{-q'}^* \cdot \left[q'_{GQ'Q''}^{k'k''} \cdot {}_b\rho_{Q''}^{k''} + (-)^{k'+k''} \cdot q'_{GQ'Q''}^{k'k''} \cdot {}_a\rho_{Q''}^{k''} \right]$$

$$+ iP_{ab} \mathcal{E}^* \cdot e_q^* \cdot \delta_{k',1} \cdot \frac{n \cdot W_M(v)}{\sqrt{3}} \quad (I-20c)$$

where $\omega = \omega_b - \omega_a$ is the atomic frequency and where two geometrical factors are defined by means of the 3J and 6J coefficients :

$$q_{\beta\alpha}^{k'k} = (-)^{J_\alpha + J_\beta + Q'} \sqrt{(2k+1)(2k'+1)} \cdot \begin{pmatrix} k' & 1 & k \\ Q' & q & -Q \end{pmatrix} \cdot \begin{Bmatrix} k' & 1 & k \\ J_\beta & J_\beta & J_\alpha \end{Bmatrix} \quad (\text{I-21})$$

$$a(k') = \frac{1}{k'} \cdot \left(\frac{[(J_a + J_b + 1)^2 - k'^2][k'^2 - (J_a - J_b)^2][k'^2 - Q'^2]}{4k'^2 - 1} \right)^{1/2} \quad (\text{I-22})$$

Let us point out that, in equations I-20, ρ represents the laser-induced modifications of the density matrix. To obtain the total density matrix, we must add the discharge-induced a and b populations when the laser is off, $\lambda_\alpha / \Gamma_\alpha(0)$. Indeed, the total density matrix is :

$$\rho_t = \begin{pmatrix} b^\rho + \frac{\lambda_b}{\Gamma_b(0)} \cdot b T_0^{(0)} \cdot W_M(\nu) & ba^\rho \\ ab^\rho & a^\rho + \frac{\lambda_a}{\Gamma_a(0)} \cdot a T_0^{(0)} \cdot W_M(\nu) \end{pmatrix} \quad (\text{I-23})$$

That is the reason why the discharge term λ_β does not appear in equations I-20 a-b. But, in equation I-20c, there is a source-term proportional to the laser-off populations inversion :

$$n = \frac{\lambda_b}{\Gamma_b(0) \sqrt{2J_b + 1}} - \frac{\lambda_a}{\Gamma_a(0) \sqrt{2J_a + 1}} \quad (\text{I-24})$$

In I-20c, the different tensorial orders are coupled when ω_a and ω_b are different (anomalous Zeeman effect). This coupling disappears either if the Lande factors are equal or if the laser transition is a $J=1 \rightarrow J=0$ transition. We shall neglect this coupling in the following. The validity of this approximation will be considered later on.

To solve equations I-20, M. DUMONT [4] (as other authors [2]) has used an iteration procedure : at first order in the electric field, optical coherence (represented by $\rho_{ab}^{(1)k'}$) appears which is due to the "n" source-term in equation I-20c. This optical coherence is put into equations I-20a,b and causes tensorial quantities to appear in levels a and b at the second order. These quantities have the following form : [21]

$$\rho_{ab}^{(2)k}(v,r,t) = \sum_{\mu,\nu} \rho_{ab}^{(2)k}(v,\nu,\mu) \cdot \epsilon^{\nu*} \cdot \epsilon^{\mu} \cdot e^{i[(\omega_{\nu} - \omega_{\mu})t - (k_{\nu} - k_{\mu})r]} \quad (I-25)$$

These solutions are modulated at all beat frequencies, $\omega_{\nu} - \omega_{\mu}$. If we neglect small frequency shifts, the modes frequencies are equidistant :

$$\Delta\omega = c \cdot \Delta k = \pi \frac{c}{L} \quad (I-26)$$

where c is the light velocity and L is the cavity length.

We can write I-25 following the general form :

$$\rho_{ab}^{(2)k}(v,r,t) = \sum_p \rho_{ab}^{(2)k}(v,p) \cdot e^{ip[\Delta\omega \cdot t - \Delta k \cdot r]} \quad (I-27)$$

where p is an integer. It is easy to show that the higher order terms will appear in the same way. I-27 will be taken as a starting equation to find the stationary solution of I-20 by a method without iteration.

C. Stationary operation

The Fourier expansion (I-27) is put into I-20c :

$$\rho_{ab}^{(2)k'} = [i(\omega - \omega_Z) - \Gamma_{ab}(k')] \rho_{ab}^{(1)k'} + i \sum_{\mu,p} \epsilon^{\mu*} \cdot \rho_{ab}^{(1)k'}(v,p') \cdot e^{i[(\omega_{\mu} + p' \Delta\omega)t - (k_{\mu} + p' \Delta k)r]} \quad (I-28)$$

with
$$\omega_Z = \frac{\omega_a + \omega_b}{2} \quad (I-29)$$

and

$$\begin{aligned} {}_{ab}\zeta_{Q'}^{k'}(v, p') &= e_{Q'}^* \frac{nW_M(v)}{\sqrt{3}} \cdot \delta_{k',1} \cdot \delta_{p',0} + \\ &+ \sum_{k''Q''q'} e_{-q'}^* \cdot \left[{}_{ba}G_{Q'Q''}^{k'k''} \cdot {}_{b}P_{Q''}^{k''}(v, p') + (-)^{k'+k''} \cdot {}_{ab}G_{Q'Q''}^{k'k''} \cdot {}_{a}P_{Q''}^{k''}(v, p') \right] \end{aligned}$$

(I-30)

The stationary solution is immediately obtained :

$${}_{ab}\rho_{Q'}^{k'} = i \cdot P_{ab} \cdot \sum_{\mu, p'} \frac{\mathcal{E}^{\mu*} \cdot {}_{ab}\zeta_{Q'}^{k'}(v, p') \cdot e^{i[(\omega_{\mu} + p'\Delta\omega)t - (k_{\mu} + p'\Delta k)r]}}{\Gamma_{ab}(k') + i[\omega_{\mu} + p'\Delta\omega - \omega + Q'\omega_Z - (k_{\mu} + p'\Delta k)v]} \quad (I-31)$$

In multiplying I-31 by \mathcal{E} (to obtain the source-term of I-20), the following expression appears

$$\mathcal{E} \cdot {}_{ab}\rho_{Q'}^{k'} = i P_{ab} \sum_{\mu, \nu, p'} \frac{\mathcal{E}^{\mu*} \mathcal{E}^{\nu} \cdot {}_{ab}\zeta_{Q'}^{k'}(v, p') \cdot e^{i[(\omega_{\mu} - \omega_{\nu} + p'\Delta\omega)t - (k_{\mu} - k_{\nu} + p'\Delta k)r]}}{\Gamma_{ab}(k') + i[\omega_{\mu} + p'\Delta\omega - \omega + Q'\omega_Z - (k_{\mu} + p'\Delta k)v]} \quad (I-32)$$

Or, in another way,

$$\mathcal{E} \cdot {}_{ab}\rho_{Q'}^{k'} = i (P_{ab})^{-1} \sum_{s, p'} {}_{p'}S_{Q'}^{s, k'}(v, \omega_Z) \cdot {}_{ab}\zeta_{Q'}^{k'}(v, p') \cdot e^{i(p'+s)[\Delta\omega \cdot t - \Delta k \cdot r]} \quad (I-33)$$

where (with the approximation $k_{\mu} + p'\Delta k \simeq \bar{k}$ [22])

$${}_{p'}S_{Q'}^{s, k'}(v, \omega_Z) = \sum_{\mu} \frac{P_{ab}^2 \cdot \mathcal{E}^{\mu*} \cdot \mathcal{E}^{\mu-s}}{\Gamma_{ab}(k') + i[\omega_{\mu} + p'\Delta\omega - \omega + Q'\omega_Z - \bar{k} \cdot v]} \quad (I-34)$$

$\mathcal{E}^{\mu-s}$ is the field amplitude corresponding to the frequency $\omega_{\nu} = \omega_{\mu} - s \Delta \omega$. The sum on μ is from $s+1$ to N , if s is positive, or from 1 to $N+s$, if s is negative.

$P_{ab}^2 \cdot [\Gamma_{ab}(k') + i(\omega_{\mu} + p'\Delta\omega - \omega + Q'\omega_Z - \bar{k} \cdot v)]^{-1}$ is the atomic cross section associated to the absorption or stimulated emission of a photon. Subsequently, ${}_{p'}S_{Q'}^{s, k'}$ can be understood as the probability that a $p'\Delta\omega$ -modulated atomic quantity

so interacts with a laser photon as to become modulated at frequency $(p'+s)\Delta\omega$. $s_{p',Q'}^{k'}$ characterizes the linear response of atoms to the laser irradiation.

Finally, we bring equation I-33 and its complex conjugate in I-20, and, with the help of the Fourier expansion I-27, we obtain the following relations between the Fourier coefficients, for the stationary operation :

$$\begin{aligned}
 & [\Gamma'_a(k) + i(Q\omega_a + p\Delta\omega)] \cdot a_{pQ}^k(v,p) = \gamma'_a(k) \cdot W_M(v) \cdot a_{pQ}^k(p) + \Theta(b,a,k) \cdot b_{pQ}^k(v,p) \\
 & - \sum_{k',Q',qs} (-)^{k+k'} \frac{q_{GQ'}^{k'k}}{ab} \cdot [e_{-q}^{(p-s)} s_{Q'}^{k'}(v,\omega_Z) \cdot ab \zeta_{Q'}^{k'}(v,p-s) \\
 & + (-)^{k+k'+Q+1} \cdot e_q^* \cdot (-p-s)_{-Q'}^{s_{Q'}^{k'}(v,\omega_Z)^*} \cdot ab \zeta_{-Q'}^{k'}(v,-p-s)^*] \quad (I-35a)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & [\Gamma'_b(k) + i(Q\omega_b + p\Delta\omega)] \cdot b_{pQ}^k(v,p) = \gamma'_b(k) \cdot W_M(v) \cdot b_{pQ}^k(p) \\
 & - \sum_{k',Q',qs} \frac{q_{GQ'}^{k'k}}{ba} \cdot [e_{-q}^{(p-s)} s_{Q'}^{k'}(v,\omega_Z) \cdot ab \zeta_{Q'}^{k'}(v,p-s) \\
 & + (-)^{k+k'+Q+1} \cdot e_q^* \cdot (-p-s)_{-Q'}^{s_{Q'}^{k'}(v,\omega_Z)^*} \cdot ab \zeta_{-Q'}^{k'}(v,-p-s)^*] \quad (I-35b)
 \end{aligned}$$

The Doppler effect at frequency $p\Delta\omega$ has been neglected [22]. s is an integer defined by $\omega_\mu - \omega_\nu = s\Delta\omega$. If the laser has N modes, the sum on s is from $-N+1$ to $N-1$.

Up to now, we have not done any hypotheses on the number of modes, N , the Doppler width, $\Delta\nu = \bar{K}u$, the relative importance of the mode splitting, $\Delta\omega$, and of the various relaxation rates, $\Gamma'_{ab}(k')$ and $\Gamma_\beta(k)$. The application range of I-35 is very large : the laser is either monomode or multimode, the transition may be visible or infrared, the pressure range is not limited, and we can consider atomic or molecular transitions.

III - BROAD-LINE APPROXIMATION

In this section, our purpose is to simplify the expression of ${}_{p'}^s S_{Q'}^k$ (see I-34). We shall do some approximations that we shall call "BROAD-LINE APPROXIMATION" (BLA). The validity of these approximations will be examined in a detailed manner, in the last section. We shall see that they are fairly well fulfilled for the visible or near infrared transitions of neutral atoms, in the usual pressure range (1-5 torrs).

We assume the laser to be phase-locked (the free running modes case will be considered in paragraph C). All the modes have the same phase ϕ that we shall take equal to zero : ξ^μ is real and positive.

A. Broad Line approximation

1°) Approximate expression for S by means of an integral

The optical coherence relaxation rate is assumed to be greater than the mode splitting and the laser oscillates on a great number of modes.

$$\Gamma_{ab}(k') > \Delta\omega \quad (I-36)$$

$$N \gg 1 \quad (I-37)$$

We also assume that ξ^μ is a slowly varying function of μ : $(\xi^{\mu+1} - \xi^\mu)/\xi^\mu \ll 1$.

In this case, the right-hand side of I.34 is slowly varying with μ and S can be written as an integral

$${}_{p'}^s S_{Q'}^k(v, \omega_z) = \int_{-N/2+s}^{N/2} \frac{p_{ab}^2 \cdot \xi^\mu \cdot \xi^{\mu-s} \cdot dx_\mu}{\Gamma_{ab}(k') + i[\bar{\omega} - \omega + (x_\mu + p')\Delta\omega + Q'\omega_z - Rv]}$$

where s is assumed to be positive.

$\bar{\omega}$ is the laser mean frequency, $\bar{\omega} = N^{-1} \sum_{\mu} \omega_{\mu}$, and x_{μ} is equal to $(\omega_{\mu} - \bar{\omega})/\Delta\omega$. For negative s, the integral limits are $-N/2$ and $s+N/2$.

2°) Elimination of the dependence on the magnetic field and on the modulation order.

In general, the experimental values of the magnetic field are weak

enough to verify the following condition.

$$N \Delta \omega \gg \omega_z \quad (\text{I-39a})$$

Due to the resonant factor of the left-hand side of I-35, in weak field, the modulations at the $p \Delta \omega$ frequency are off-resonance for large p values and

we assume
$$N \Delta \omega \gg p' \Delta \omega, s \Delta \omega \quad (\text{I-39b})$$

As \mathcal{E}^μ is slowly varying with μ , I-38 is replaced by

$$\frac{s_{p'} S_{Q'}^{k'}}{p'} = \int_{-N/2}^{+N/2} \frac{(P_{ab} \mathcal{E}^\mu)^2 dx_\mu}{\Gamma_{ab}(k') + i[\bar{\omega} - \omega + x_\mu \Delta \omega - \kappa v]} \quad (\text{I-40})$$

3°) Elimination of the velocity dependence

The laser width is assumed to be much greater than the Doppler

width
$$N \Delta \omega \gg \Delta v = \kappa u \quad (\text{I-41})$$

The previous equation becomes

$$\frac{s_{p'} S_{Q'}^{k'}}{p'} = \gamma^{-1} \delta = \int_{-N/2}^{+N/2} \frac{(P_{ab} \mathcal{E}^\mu)^2 dx_\mu}{\Gamma_{ab}(k') + i[\bar{\omega} - \omega + x_\mu \Delta \omega]} \quad (\text{I-42})$$

If the laser is centered on the atomic frequency ($\bar{\omega} = \omega$) and if the modes nearly have the same intensity,

$$(\mathcal{E}^\mu)^2 \approx \bar{\mathcal{E}}^2 = \frac{I}{N} \quad (\text{I-43a})$$

with
$$I = \sum_{\mu} |\mathcal{E}^\mu|^2 \quad (\text{I-43b})$$

We obtain :

$$\delta = 0 \quad \text{and} \quad \gamma = 2 \frac{P_{ab}^2 \cdot I}{N \Delta \omega} \tan^{-1} \left(\frac{N \Delta \omega}{2\Gamma_{ab}(k')} \right) \quad (\text{I-44})$$

If

$$N \Delta \omega \gg \Gamma_{ab}(k') \quad (\text{I-45})$$

$$\gamma = \pi \frac{P_{ab}^2 I}{N \Delta \omega} \quad (\text{I-46})$$

γ is independent of the relaxation rate, $\Gamma_{ab}(k')$.

On the other hand, if
$$N \Delta \omega \ll \Gamma_{ab}(k') \quad (\text{I-47})$$

$$\gamma = \frac{P_{ab}^2 I}{\Gamma_{ab}(k')} \quad (\text{I-48})$$

The condition I-45 is much more likely than I-47.

B. Equations of motion in the Broad-Line approximation

We assume $S_{p,S_{Q'}}^{k'}$ (v, ω_z) to be equal to γ . γ is a laser-induced transition probability which is independent of the magnetic field and the atomic velocity. Subsequently, the solution of I-35 has obviously the following from :

$$\beta_{pQ}^k(v,p) = \beta_{pQ}^k(p) \cdot W_M(v) \quad (I-49)$$

The internal and external variables are independent. The equations of motion become [23] :

$$[\Gamma_a(k) + i(Q\omega_a + p \Delta\omega)] \cdot \beta_{aQ}^k(p) = \Theta(b,a,k) \cdot \beta_{bQ}^k(p)$$

$$-\gamma \sum_{k'Q'qs} (-)^{k+k'} \frac{q_{GQ'}^{k'k}}{ab} \cdot [e_{-q} \cdot \beta_{abQ'}^{k'}(p-s) + (-)^{k+k'+Q+1} \cdot e_q^* \cdot \beta_{abQ'}^{k'*}(-p-s)] \quad (I-50a)$$

$$[\Gamma_b(k) + i(Q\omega_b + p \Delta\omega)] \cdot \beta_{bQ}^k(p) =$$

$$-\gamma \sum_{k'Q'qs} \frac{q_{GQ'}^{k'k}}{ba} \cdot [e_{-q} \cdot \beta_{abQ'}^{k'}(p-s) + (-)^{k+k'+Q+1} \cdot e_q^* \cdot \beta_{abQ'}^{k'*}(-p-s)] \quad (I-50b)$$

where

$$\beta_{abQ'}^{k'}(p') = e_{Q'}^* \cdot \frac{n}{\sqrt{3}} \cdot \delta_{k'1} \cdot \delta_{p'0} + \sum_{k''Q''q'} e_{-q'}^* \cdot \left[\frac{q'_{GQ''}^{k'k''}}{ba} \cdot \beta_{bQ''}^{k''}(p') + (-)^{k'+k''} \cdot \frac{q'_{GQ''}^{k'k''}}{ab} \cdot \beta_{aQ''}^{k''}(p') \right] \quad (I-51)$$

In these equations, the relaxation rates are the velocity averaged ones, $\Gamma_\beta(k)$ (see I-17). Introducing the following notations, [24]

$$\beta_{HQQ''}^{qq'kk''} = \sum_{k'Q'} \frac{q_{GQ'}^{k'k}}{\beta\alpha} \cdot \frac{-q'_{GQ''}^{k'k''}}{\beta\alpha} \quad (I-52)$$

$$\beta_{\alpha HQQ''}^{qq'kk''} = \sum_{k'Q'} (-)^{k'+k''+1} \cdot \frac{q_{GQ'}^{k'k}}{\beta\alpha} \cdot \frac{-q'_{GQ''}^{k'k''}}{\alpha\beta} \quad (I-53)$$

We finally obtain [26]

$$\begin{aligned}
 [\Gamma_a(k) + i(Q\omega_a + p\Delta\omega)] \cdot \bar{\rho}_Q^k(p) &= \theta(b, a, k) \cdot \bar{\rho}_Q^k(p) + (-)^k \frac{2n\gamma}{\sqrt{3}} \cdot \sum_{q', q} e_{-q} \cdot e_{q'}^* \cdot {}_{ab}G_{q'Q}^{1k} \\
 &+ 2\gamma \sum_{\substack{k''Q'' \\ qq's}} (-)^{k+k''} \cdot e_{-q} \cdot e_{q'}^* \cdot {}_{ab}H_{QQ''}^{qq'kk''} \cdot \bar{\rho}_{Q''}^{k''}(p-s) \\
 &- \gamma \sum_{\substack{k''Q'' \\ qq's}} (-)^{k+k''} \cdot [e_{-q} \cdot e_{q'}^* + (-)^{k+k''+Q+Q''} e_{-q'} \cdot e_q^*] \cdot {}_{ab}H_{QQ''}^{qq'kk''} \cdot \bar{\rho}_{Q''}^{k''}(p-s)
 \end{aligned}$$

(I-54a)

$$\begin{aligned}
 [\Gamma_b(k) + i(Q\omega_b + p\Delta\omega)] \cdot \bar{\rho}_Q^k(p) &= -\frac{2n\gamma}{\sqrt{3}} \cdot \sum_{qq'} e_{-q} \cdot e_{q'}^* \cdot {}_{ba}G_{q'Q}^{1k} \\
 &+ 2\gamma \sum_{\substack{k''Q'' \\ qq's}} e_{-q} \cdot e_{q'}^* \cdot {}_{ba}H_{QQ''}^{qq'kk''} \cdot \bar{\rho}_{Q''}^{k''}(p-s) \\
 &- \gamma \sum_{\substack{k''Q'' \\ qq's}} [e_{-q} \cdot e_{q'}^* + (-)^{k+k''+Q+Q''} e_{-q'} \cdot e_q^*] \cdot {}_{ba}H_{QQ''}^{qq'kk''} \cdot \bar{\rho}_{Q''}^{k''}(p-s)
 \end{aligned}$$

(I-54b)

This system of equations couples the density matrix components inside levels a and b. The terms that are due to the evolution of the atoms in the magnetic field and to the relaxation, have been placed in the left-hand side of these equations. The right-hand side gets together the contributions of the spontaneous emission and of the interaction with the laser field. Let us analyse these last contributions.

1) The $\bar{\rho}_a$ term represents the effect of the laser on the atoms in the lower level : this is the effect of a photon absorption. As it can be seen

in I-54, the angular part of the absorption process is decoupled from the absorption probability, γ . This property is also obtained in the optical pumping with an ordinary light source. [29] The analogy between the two situations is studied in section III-D and in appendix C. The angular coefficients could be obtained from considerations on the conservation of the total angular momentum of the system atom + laser photon, during the absorption process. The photon, in a given spin state, is absorbed by an atom in level a, having a given angular momentum, and brings this atom into the upper level. This transition of an atom from level a to level b changes the global angular properties of the atomic gas in the lower level (due to the fact that the removed atom carries a certain orientation) and in the upper level. This explains the presence of a term with \bar{p}_a in I-54a and I-54b.

2) Likewise, the \bar{p}_b term represents the effect of the laser on the atoms in the upper level : this is the effect of stimulated emission. This process and the absorption one are symmetrical. In ordinary optical pumping, such a process was not taken into account. Let us point out that absorption and stimulated emission do not interfere and appear in an uncorrelated way. Contrary to the coupling by spontaneous emission which is isotropic (term with Θ in I-54a), the coupling by stimulated emission is anisotropic, because of the laser polarization.

3) The term with n is the source-term at the second order in the electric field : it represents the effect of both the absorption and the stimulated emission on the laser-off populations inversion, n.

C. Free running modes

With the help of I-13, I-34 can be written

$$s_{p, S, Q}^{s, k'}(\nu, \omega_Z) = \sum_{\mu} \frac{P_{ab}^2 \cdot |\mathcal{E}^{\mu}| \cdot |\mathcal{E}^{\mu-s}| \cdot e^{-i(\phi_{\mu} - \phi_{\mu-s})}}{\Gamma_{ab}(k') + i(\omega_{\mu+p'}\Delta\omega - \omega + Q'\omega_Z - K\nu)} \quad (\text{I-55})$$

When the modes are free running, the phase ϕ_μ is a random function of μ

1/ $s=0$

For zero s , $\phi_\mu - \phi_{\mu-s} = 0$ and the free-running modes case is equivalent to the phase-locked one. What has been said in section III-A is still valid.

2/ $s \neq 0$

${}_{p,S}^s S_{Q,k'}$ is the sum of terms such as $f(\mu) \cdot e^{i\psi_\mu}$, where $f(\mu)$ is slowly varying with μ and ψ_μ a random function of μ . S cannot be expressed as an integral anymore. In the BLA conditions ($\Gamma_{ab} > \Delta\omega$), the various terms of I-55 vanish by interference and $S(s \neq 0) \ll S(s=0)$

We finally get :

$${}_{p,S}^s S_{Q,k'}(v, \omega_z) = \gamma \cdot \delta_{s,0} \quad (\text{I-56})$$

where γ is defined in section III-A.

The exact validity of I-56 is analysed in a more detailed manner in ref. [27] As long as the discharge excitation does not create modulation, the density matrix modulations at the $p\Delta\omega$ frequencies disappear, due to I-56 : the equations I-54 are still valid, provided that $p=s=0$. Subsequently, in the free running modes case, the condition I-39b is verified very well.

D. Physical meaning of the broad-line approximation.

Relation I-49 means that internal and external variables are separated : the atomic response to the laser irradiation does not depend on the velocity. This can be interpreted in the following way.

Let us consider the velocity distribution of one of the laser levels (Figure 2). A mode μ interacts with the atoms having such a velocity that the mode frequency shifted by Doppler effect is equal to the atomic frequency, up to the natural width of the atomic transition : $\omega_\mu - k_\mu v = \omega$. Subsequently each laser mode creates a hole in the velocity distribution (the well-known "BENNETT hole" [28]).

The hole width is proportional to twice the optical coherence relaxation rate, Γ_{ab} , and their distance is proportional to the mode splitting, $\Delta\omega$. If $\Gamma_{ab} > \Delta\omega$, the holes are overlapping and the hole structure of the atomic response disappears. If, in addition, the modes cover all the velocity distribution ($N \Delta\omega > \overline{Ku}$), the atomic response does not depend on the velocity : we get the relation I-49.

In the previous discussion, we have shown that the hole structure disappears if $\Gamma_{ab} > \Delta\omega$. For the atoms, everything happens as if the mode structure of the laser line were vanishing, and the laser line becomes equivalent to an ordinary light source of width $N\Delta\omega$. Subsequently, an analogy appears between the laser pumping and the optical pumping by an ordinary light source described by BARRAT and COHEN-TANNOUJJI [29]. As, in an ordinary source, the relative phase of the various field components are random, this analogy will be complete in the case when the laser modes are free running. This point, which is studied in a more detailed manner in appendix C, had previously been analysed by M. DUMONT. [5]

As shown in appendix C, this analogy leads to considering γ and δ (equation I-42) respectively as the probability of real and virtual laser-induced transitions. It also leads to a physical interpretation of conditions I-39, I-41 and I-45.

As in the case of an ordinary source, we can associate to the free-running multimode laser field a correlation time of about $T_L \simeq 2\pi(N\Delta\omega)^{-1}$. In the same way as in usual pumping, this correlation time determines the decay time of the transient phenomena appearing in the a and b levels after an interaction between an atom and a laser photon [48]. This means that the absorption or the stimulated emission, seen from the laser levels, lasts a time of the order of T_L .

This property is also valid for a phase-locked laser, in the BLA approximation. It is no longer possible to associate the atom-photon interaction transient time to the correlation time of the laser field, because the latter is infinite. But we can use another simple physical argument.

Let us analyse the time behaviour of the laser electric field. At position r_0 , the field is given by (see I-15)

$$\mathcal{E}(t) = e^{-i\bar{\omega}(t-t_0)} \sum_{\mu} \mathcal{E}^{\mu} \cdot e^{-i\mu\Delta\omega(t-t_0)} \quad (\text{I-57})$$

where $r_0 = ct_0$, $\bar{\omega}$ is the laser mean frequency and μ varies between $-N/2$ and $N/2$ by integer values. \mathcal{E}^{μ} is real and positive for a phase-locked laser. For $t = t_0$ all the modes are in phase and the field amplitude is maximum. For $t - t_0 \gg 2\pi/N\Delta\omega$, every phase has increased differently and there is a destructive interference. The field amplitude vanishes. For $t - t_0 = 2\pi/\Delta\omega$, all the modes get the same phase again and the amplitude is maximum. The laser field is modulated in short periodic pulses of width of the order of T_L and of period $2\pi/\Delta\omega$ (see figure 3).

Two cases are possible :

$$1^{\circ}) \quad \underline{\Gamma_{ab} \ll \Delta\omega}$$

The optical dipole created by a pulse has a lifetime long enough to wait for the next pulse. Then a second interaction with the laser field may occur and the atom will undergo a transition between levels a and b : a time-delayed photon absorption may appear [50]

$$2^{\circ}) \quad \underline{\Gamma_{ab} \gg \Delta\omega}$$

The latter process is no longer possible because the optical dipole vanishes before the transit of the second pulse (For $\Gamma_{ab} = \Delta\omega$, the dipole is already reduced by a factor $e^{-2\pi} \approx 2.10^{-3}$). The two successive interactions with the electric field must be realized during the transit time of one pulse. As it is in the free running case, the photon absorption time is of the order

of T_L . The difference between the two operations comes from the time-modulations of the phase-locked laser intensity which involve the modulations of the atomic quantities.

Introducing the characteristic interaction time, T_L , we can write

I-39 a-b as

$$\frac{\omega_L}{2\pi} \cdot T_L \ll 1 \quad (\text{I-58a})$$

and

$$\frac{p\Delta\omega}{2\pi} \cdot T_L \ll 1 \quad (\text{I-58b})$$

I-58a means that the optical coherence does not precess under the effect of the magnetic field during the interaction time. Since the magnetic field has not enough time to operate, the transition probability γ does not depend on H . From this, we can obtain the condition which allows us to neglect the coupling between the various $\rho_{ab}^{k'}$ in I-20c. The $(\omega_a - \omega_b)$ factor means that this coupling is induced by the magnetic field, due to the anomalous Zeeman effect. If

$$\frac{\omega_a - \omega_b}{2\pi} \cdot T_L = \frac{\omega_a - \omega_b}{N \Delta \omega} \ll 1 \quad (\text{I-59})$$

the magnetic field has not enough time to induce this coupling during the characteristic interaction time and it can be neglected. A more detailed calculation is presented in appendix D.

Similarly, I-58b means that, during the absorption time, the density matrix does not evolve at the modulations frequencies : γ is independent of these modulations. Condition I-41 is equivalent to $\frac{\hbar u}{2\pi} \cdot T_L \ll 1$ or else $u \cdot T_L \ll \lambda$. During the absorption time, the atom travels across a distance much smaller than the laser wavelength. The Doppler shift of the optical dipole does not appear and γ does not depend on the velocity.

Lastly I-45 can be written $\Gamma_{ab} \cdot T_L \ll 1$. Thus γ is not sensitive to the optical dipole decay and appears as the product of the interaction strength, P_{ab}^2 I, by the interaction time $(N\Delta\omega)^{-1}$. But in the contrary case ($\Gamma_{ab}^{-1} \ll T_L$) the optical coherence lifetime is much smaller than the pulse

duration : now Γ_{ab}^{-1} is the photon-atom interaction time. This explains the shape of I-48 : $P_{ab}^2 I.(\Gamma_{ab})^{-1}$.

IV- LINEAR POLARIZATION

In the following, we shall analyse equations I-54 in the more compact form ($\beta = a$ or b) :

$$\left[\Gamma_{\beta}(k) + i(Q\omega_{\beta} + p \Delta\omega) \right] \beta \bar{\rho}_{Q}^k(p) = \delta_{\beta,a} \cdot \Theta(b,a,k) \cdot \beta \bar{\rho}_{Q}^k(p) + \frac{n\gamma}{\sqrt{3}} \cdot \beta g_{Q}^k + \gamma \sum_{k''Q''s} [\beta \alpha^{h_{QQ''}^{kk''}} \cdot \alpha \bar{\rho}_{Q''}^{k''}(p-s) - \beta^{h_{QQ''}^{kk''}} \cdot \beta \bar{\rho}_{Q''}^{k''}(p-s)] \quad (I-60)$$

with

$$\beta g_{Q}^k = -2 \sum_{qq'} e_{-q} \cdot e_{q'}^* \cdot \beta a_{q'Q}^{q1k} \quad (I-61)$$

$$\beta a^{h_{QQ''}^{kk''}} = 2 \sum_{qq'} e_{-q} \cdot e_{q'}^* \cdot \beta a_{q'Q''}^{qq'kk''} \quad (I-62)$$

$$\beta^{h_{QQ''}^{kk''}} = \sum_{qq'} [e_{-q} \cdot e_{q'}^* + (-)^{k+k''+Q+Q''} \cdot e_{-q'} \cdot e_q^*] \cdot \beta a_{q'Q''}^{qq'kk''} \quad (I-63)$$

and similar expressions for the a level.

When the laser is linearly polarized, the polarization vector \vec{e} is

$$\text{real and} \quad e_q = (-)^q \cdot e_{-q}^* \quad (I-64)$$

$$\text{Thus} \quad \beta g_{Q}^1 = 0 \quad (I-65)$$

and

$$\beta \alpha^{h_{QQ''}^{kk''}} = 0 \quad \text{for odd } (k-k'') \quad (I-66)$$

I-65 means that, up to the second order in the electric field, the laser creates population, $k=0$, and alignment, $k=2$ (no orientation, $k=1$). This

is a well-known result in optical pumping. On the other hand, I-66 means that a coupling only appears between such tensorial quantities as $k-k''=0$ or ± 2 . At all orders in the field, the laser only creates even tensorial orders.

A. π polarization

When the polarization vector is parallel to the magnetic field, $e_0 = 1$ and $e_{\pm 1} = 0$. The selection rules of the 3J coefficients prescribe $Q=Q''=0$ in I-54. The equations of motion do not depend on the magnetic field anymore [30]. When the modes are free running, there are no modulations and one obtains :

$$\Gamma_a(k) \cdot \bar{\sigma}_0^k = \Theta(b,a,k) \cdot \bar{\sigma}_0^k + \frac{2n\gamma}{\sqrt{3}} \cdot \frac{0}{ab} G_{00}^{1k} + 2\gamma \sum_{k''} \left[\frac{00}{ab} H_{00}^{kk''} \cdot \bar{\sigma}_0^{k''} - \frac{00}{a} H_{00}^{kk''} \cdot \bar{\sigma}_0^{k''} \right] \quad (I-67a)$$

$$\Gamma_b(k) \cdot \bar{\sigma}_0^k = -\frac{2n\gamma}{\sqrt{3}} \cdot \frac{0}{ba} G_{00}^{1k} + 2\gamma \sum_{k''} \left[\frac{00}{ba} H_{00}^{kk''} \cdot \bar{\sigma}_0^{k''} - \frac{00}{b} H_{00}^{kk''} \cdot \bar{\sigma}_0^{k''} \right] \quad (I-67b)$$

where $\bar{\sigma}$ is the density matrix for the π polarization. In the phase-locked case, the equations I-67 are still valid if

$$\Gamma_\beta(k) \ll \Delta\omega \quad (I-68)$$

The density matrix modulations contain the non-resonant factor $(\Gamma_\beta(k) + ip\Delta\omega)^{-1}$ and are negligible.

Due to the selection rules of the 3J coefficients, the tensorial order of the optical coherences must be odd [31]. Subsequently the H coefficients are defined by

$$\frac{00}{\beta\alpha} H_{00}^{kk''} = \sum_{k' \text{ odd}} \frac{0}{\beta\alpha} G_{00}^{k'k} \cdot \frac{0}{\alpha\beta} G_{00}^{k'k''} \quad (I-69)$$

and

$$\frac{00}{\beta} H_{00}^{kk''} = \sum_{k' \text{ odd}} \frac{0}{\beta\alpha} G_{00}^{k'k} \cdot \frac{0}{\beta\alpha} G_{00}^{k'k''} \quad (I-70)$$

An interesting case corresponds to the transitions verifying

$$J_a + J_b \leq 2 \quad (I-71)$$

They are the $J=0 \leftrightarrow J=1$, $J=1 \leftrightarrow J=1$ and $J=1/2 \leftrightarrow J=3/2$ transitions.

Due to the selection rules ($k' \leq J_a + J_b$), k' must be equal to one and the H coefficients factorize. The $\overline{\zeta}_{ab}$ coefficients (equation I-51) can be reintroduced in I-67 :

$$\Gamma_a(k) \cdot \frac{1}{a \sigma_0^k} = 2\gamma_{ab} \overline{\zeta}_{ab}^{-1} \cdot \left[\frac{O_{ab}^{G1k}}{\Gamma_b(k)} - \frac{\Theta(b,a,k)}{\Gamma_b(k)} \cdot \frac{O_{ba}^{G1k}}{\Gamma_a(k)} \right] \quad (I-72a)$$

$$\Gamma_b(k) \cdot \frac{1}{b \sigma_0^k} = -2\gamma_{ab} \overline{\zeta}_{ab}^{-1} \cdot \frac{O_{ba}^{G1k}}{\Gamma_a(k)} \quad (I-72b)$$

It is easy to show that :

$$\overline{\zeta}_{ab}^{-1} = \frac{n}{\sqrt{3}} \cdot \left\{ 1 + 2\gamma \sum_k \left(\frac{\left(\frac{O_{ab}^{G1k}}{\Gamma_b(k)} \right)^2}{\Gamma_b(k)} + \frac{\left(\frac{O_{ba}^{G1k}}{\Gamma_a(k)} \right)^2}{\Gamma_a(k)} - \Theta(b,a,k) \cdot \frac{\frac{O_{ab}^{G1k}}{\Gamma_b(k)} \frac{O_{ba}^{G1k}}{\Gamma_a(k)}}{\Gamma_a(k) \cdot \Gamma_b(k)} \right) \right\}^{-1} \quad (I-73)$$

All the density matrix components show the same variations with the laser intensity and their ratios are constant [32] .

This last result can be interpreted by simple physical considerations. On the figure 4, the different laser transitions have been represented. It is essential to notice that, in every case, all the allowed transitions have the same probability. Due to this fact and to the spherical symmetry of the relaxation, the Zeeman sublevels of a laser level, which are connected by these transitions, undergo identical populations modifications. This characteristic is valid at all orders in the laser electric field. The other sublevels may be populated by the depolarizing relaxation processes. Subsequently, at every order in the electric field, the proportion between the laser-induced modifications of the sublevels populations is constant : their ratio is independent of the laser intensity.

From equations I-67, we can obtain the atomic density matrix for any linear polarization, at zero magnetic field. This can be done by performing on the density matrix components, the rotation which brings the Oz axis on the selected polarization axis [31]. Particularly, for the

polarization along the Oy axis,

$$\beta \bar{\rho}_Q^k (H=0) = R_{QQ}^{(k)} (\pi/2, \pi/2, 0) \beta \bar{\sigma}_0^k = (-)^{k/2} \frac{[(k+Q)! (k-Q)!]^{1/2}}{2^k (\frac{k+Q}{2})! (\frac{k-Q}{2})!} \beta \bar{\sigma}_0^k \quad (I-74)$$

k and Q are even. $R_{QQ}^{(k)}$ are the rotation matrix components [25]. For the transitions verifying $J_a + J_b \leq 2$, the ratios between the density matrix components are constant. This is the reason why the anisotropy rate of the laser-induced fluorescence variations does not depend on the laser intensity (For experimental verifications, see reference [1a] figure 4 and reference [10], figures 7 and 14).

B. σ polarization

If the polarization axis is perpendicular to Oz, $e_0 = 0$. Thus, we easily show that Q must be even. When the field is equal to zero, by carrying out a rotation which brings the polarization direction on Oz, we reduce the problem to the previous one.

In the other cases, we must consider the equations I-60: For a laser polarization along the Oy axis, $e_{\pm 1} = -\frac{1}{\sqrt{2}}$, $e_0 = 0$ and subsequently

$$\beta \alpha^h \rho_{QQ}^{kk''} = \sum_{\substack{q' \neq 0 \\ q \neq 0}} \frac{q q'}{\beta \alpha} H_{QQ}^{kk''} \quad (\beta, \alpha = a \text{ or } b) \quad (I-75)$$

For each particular transition, the equations I-60 are entirely solvable. In practice, for high J values, the calculations become too complicated. The equations of motion have been solved at all orders in the field by an analytic calculation for $J=1 - J=0$ [17] and $J=1 - J=1$ [46] transitions, and by a computer calculation for a $J=1 - J=2$ [33] transition. The exact solutions and the experimental verifications will be presented in forthcoming papers. In the following, we study the behaviour of the solution for any J value, by means of a fourth order perturbation expansion which is only valid at weak laser intensities. The results will be compared with previous calculations.

1°) Non linear effects in weak magnetic field

We maintain condition I-68 : $\Gamma_{\beta}(k) \ll \Delta\omega$. Therefore, in weak field

($\omega_\beta \simeq \Gamma_\beta(k)$), due to the non resonant factor $[\Gamma_\beta(k) + i(Q\omega_\beta + p\Delta\omega)]^{-1}$ the density matrix modulations are negligible and we set $p=s=0$ in I-60. Moreover when the modes are free running, condition I-68 is not necessary.

To the second order in the electric field (i.e, first order in γ) the laser irradiation induces a population modification (ρ_0^0) and creates a longitudinal (ρ_0^2) and transverse alignment ($\rho_{\pm 2}^2$). At higher orders, first a coupling between these quantities appears and secondly, for high J levels ($J \geq 2$), the laser creates high order multipole moments ($k \geq 4$). Generation and detection of such moments will be studied in other publications^[33]. These high order multipole moments are created only from the fourth order in the field. Subsequently, they appear in the equations of motion of the population and alignment at the sixth order : they will be neglected in the fourth order calculation.

a/ Hanle effect broadening

Up to the fourth order, the equation of motion of the b transverse alignment is given by equation I-60, in which we set $k=Q=2$ and we neglect the ρ_Q^k components for $k \geq 4$.

$$[\Gamma_b(2) + 2i\omega_b] \overline{\rho_b^2} = \frac{n\gamma}{\sqrt{3}} b g_b^2 + \gamma \sum_{k''=0,2} [b_a h_{20}^{2k''} \cdot \overline{a}^{\rho_0^{k''}} - b h_{20}^{2k''} \cdot \overline{b}^{\rho_0^{k''}}] + \gamma [b_a h_{22}^{22} \cdot \overline{a}^{\rho_2^2} - b h_{22}^{22} \cdot \overline{b}^{\rho_2^2}] \quad (I-76)$$

We shall see later on that, from the fourth order in the electric field, the longitudinal components depend on the magnetic field. Nevertheless, these variations appear into equation I-76 at the sixth order (i.e. third order in γ) only. Consequently, to study the Hanle effect shape up to the fourth order, we only take into account the coupling between the transverse alignments.

${}_b h_{22}^{22}$ is always positive :

$${}_b h_{22}^{22} = 5 \sum_{k'} (2k'+1) \left[\begin{pmatrix} k' & 1 & 2 \\ 1 & 1 & -2 \end{pmatrix}^2 + \begin{pmatrix} k' & 1 & 2 \\ 3 & -1 & -2 \end{pmatrix}^2 \right] \cdot \left\{ \begin{matrix} k' & 1 & 2 \\ J_b & J_b & J_a \end{matrix} \right\}^2 \quad (\text{I-77})$$

The coupling of ${}_b \bar{\rho}_2^2$ with it-self corresponds to a linear broadening of the Hanle effect. Its width becomes $\Gamma_b(2) + {}_b h_{22}^{22} \gamma [^3 4]$. The physical meaning is evident : due to the laser-induced transitions between a and b, the alignment mean lifetime is reduced.

If ${}_{ba} h_{22}^{22}$ is different from zero, there is a coupling between the a and b transverse alignments and the shape of Hanle effect of b is no more Lorentzian [³⁵].

Using the symmetry relations of $H [^2 4]$, we obtain :

$${}_{ba} h_{22}^{22} = 2 \cdot \frac{-11 {}_{ba} H_{22}^{22}}{{}_{ba} H_{22}^{22}} = 10 \cdot \left\{ \begin{matrix} 3 & 1 & 2 \\ J_b & J_b & J_a \end{matrix} \right\} \cdot \left\{ \begin{matrix} 3 & 1 & 2 \\ J_a & J_a & J_b \end{matrix} \right\} \quad (\text{I-78})$$

This last relation means that, in BLA, the a and b alignments are coupled through the $k'=3$ optical coherence (${}_{ab} \rho_3^3$) only. For the transitions verifying $J_a + J_b \leq 2$ (eq I-71), the coupling coefficient vanishes : there is no direct coupling of the transverse alignments (at higher orders in the field, there is an indirect coupling through the longitudinal quantities : ${}_b \rho_2^2 \rightarrow \beta^0 \rightarrow {}_a \rho_2^2$). In this case, up to the fourth order, the Hanle effect keeps a Lorentzian shape and its width is given by $\Gamma_b(2) + {}_b h_{22}^{22} \gamma$.

The apparent relaxation rate is the sum of the effects due to spontaneous emission, collisions and laser irradiation. For $J_a + J_b \leq 2$, up to the fourth order, the laser effect is equivalent to a relaxation process which does not depend on the other relaxation processes : the corresponding term has only to be added to the other relaxation terms [³⁶].

The absence of coupling is evident for the $J=0 \leftrightarrow J=1$ and $J=1/2 \leftrightarrow J=3/2$ transitions : an alignment cannot exist in one of the laser levels. The $J=1 \leftrightarrow J=1$ case can be explained by simple physical considerations. On figure 5, we have drawn the transitions induced between the two levels by a σ -polarized laser.

The b transverse alignment, which corresponds to the Zeeman coherence between the $m=-1$ and $m=1$ sublevels, is coupled by the laser to the population of the $m=0$ sublevel of level a only (dashed transitions). Likewise, the a transverse alignment is coupled to the population of the $m=0$ sublevel of b only (solid lines). Thus the laser does not couple the alignments. [37]

b/ Saturation resonances in a zero field

If we neglect the tensorial components of order $k \geq 4$, the equations of motion of the longitudinal quantities are given by :

$$\Gamma_b(k) \cdot \bar{\rho}_0^k = \frac{n\gamma}{\sqrt{3}} \cdot b_{00}^k + \gamma \cdot \sum_{k''=0,2} \left[b_{a00}^{kk''} \cdot \bar{\rho}_0^{k''} - b_{b00}^{kk''} \cdot \bar{\rho}_0^{k''} \right] \\ + \gamma \left[b_{a02}^{k2} \left(\bar{\rho}_2^2 + \bar{\rho}_2^{2*} \right) - b_{b02}^{k2} \left(\bar{\rho}_2^2 + \bar{\rho}_2^{2*} \right) \right] \quad (I-79)$$

To the fourth order, due to the coupling with $\bar{\rho}_2^2$ and $\bar{\rho}_2^{2*}$, the longitudinal quantities present a resonant variation around the zero magnetic field. This resonance is the sum of two Lorentzian shapes proportional to the a Hanle effect $\left(\bar{\rho}_2^2 + \bar{\rho}_2^{2*} \right)$ and the b Hanle effect $\left(\bar{\rho}_2^2 + \bar{\rho}_2^{2*} \right)$ respectively. The relative importance of these contributions is given by :

$$\frac{b_{a02}^{k2} \cdot \bar{\rho}_2^2(H=0)}{b_{b02}^{k2} \cdot \bar{\rho}_2^2(H=0)} = \frac{-1 - \frac{1}{2}k^2}{b_{a02}^{k2}} \cdot \frac{1}{ab} \frac{G_{12}}{G_{12}} \cdot \frac{\Gamma_b(2)}{\Gamma_a(2)} \quad (I-80)$$

For high values of J, I-80 is equal to $\Gamma_b(2)/\Gamma_a(2)$, and the importance of the contribution of the two Hanle effects is inversely proportional to their

width . From I-79, it is evident that the power broadening of the Hanle effects must also appear in the saturation resonances.

2' Non linear effects in strong field.

If the magnetic field is strong, we cannot neglect the modulations of the density matrix (in the phase-locked operation). Indeed, $\beta \bar{\rho}_Q^k(p)$ is resonant if $Q\omega_B + p\Delta\omega = 0$. First we shall study the case where either the Landé factor are equal, or the laser transition is a $J=1 - J=0$ one.

$$\underline{a/ g_a = g_b = g}$$

$\beta \bar{\rho}_Q^k(p)$ and $\beta \bar{\rho}_Q^k(p)$ are simultaneously resonant for $Q\omega_a = Q\omega_b = -p\Delta\omega$.

In particular, the first modulations of the transverse alignments appear for $2\omega_a = 2\omega_b = -\Delta\omega$. For such a value of the field, $\beta \bar{\rho}_Q^k$ presents a resonant modulation at the frequency $p\Delta\omega = \frac{Q}{2} \Delta\omega$ (Q is even).

If $\Gamma_\beta(k) \ll \Delta\omega$, the other modulations are negligible and the equations I-60 are reduced to

$$\left[\Gamma_\beta(k) + iQ\left(\omega_B + \frac{\Delta\omega}{2}\right) \right] \beta \bar{\rho}_Q^k(Q/2) = \frac{n\gamma}{\sqrt{3}} \cdot \beta g_Q^k + \delta_{\beta,a} \cdot \Theta(b,a,k) \cdot \beta \bar{\rho}_Q^k(Q/2) \\ + \gamma \sum_{k''Q''} \left[\beta \alpha_{QQ''}^{hkk''} \cdot \alpha_{Q''}^{\bar{\rho}k''} \left(\frac{Q''}{2}\right) \cdot \beta \alpha_{QQ''}^{hkk''} \cdot \beta \bar{\rho}_{Q''}^{k''} \left(\frac{Q''}{2}\right) \right] \quad (I-81)$$

When $\omega_a = \omega_b$, these equations are exactly equivalent to the weak field equations, if we replace $\left(\omega_B + \frac{\Delta\omega}{2}\right)$ by ω_B and $\beta \bar{\rho}_Q^k(Q/2)$ by $\beta \bar{\rho}_Q^k(0)$. The behaviour of the solutions are the same. All that has been said about the Hanle effect can be applied to the modulated transverse alignment, $\beta \bar{\rho}_2^2(1)$. For instance, if $J_a + J_b \leq 2$, up to the fourth order, the behaviour of $\beta \bar{\rho}_2^2(1)$ is lorentzian and centered on the following value of the field :

$$H^{(1)} = \frac{\Delta\omega}{2g \mu_\beta} \quad (I-82)$$

Due to equations similar to I-79 (where we replace $\beta \bar{\rho}_2^2$ by $\beta \bar{\rho}_2^2(1)$), this modulation of the alignment is responsible of a saturation resonance on the non-modulated longitudinal quantities. For $H = H^{(1)}$, a "lateral saturation" appears on $\beta \bar{\rho}_0^k$, having exactly the same behaviour as the "central saturation" ($H=0$).

In the same way, the modulations of the alignment at the $s \Delta \omega$ frequency appear for $H^{(s)} = s \frac{\Delta \omega}{2g\mu_B}$. Thus, $\beta \bar{\rho}_Q^k$ evolves at the frequency $p \Delta \omega = s \cdot \frac{Q}{2} \cdot \Delta \omega$. The equations I-81 are still valid, provided that we replace $\Delta \omega$ by $s \Delta \omega$, and $\beta \bar{\rho}_Q^k(\frac{Q}{2})$ by $\beta \bar{\rho}_Q^k(s \frac{Q}{2})$. In particular the longitudinal quantities present a "lateral saturation" resonant for $H=H^{(s)}$. (Nevertheless, let us remind that these results are valid only if condition I-39 is fulfilled : $s \ll N$).

The previous study shows that when :

- 1) The modes are phase-locked
- 2) The Landé factors are equal
- and 3) $\Gamma_\beta(k) \ll \Delta \omega$,

the general solution can be deduced from the solution of the equations of motion in weak field (I-60 with $p=s=0$).

If we call $\frac{0}{\beta \bar{\rho}}(H)$ the solution in weak field, the general solution is, for $Q \neq 0$,

$$\frac{0}{\beta \bar{\rho}_Q^k}(H) = \sum_s \frac{0}{\beta \bar{\rho}_Q^k}(H - H^{(s)}) \cdot e^{i \frac{sQ}{2} (t\Delta \omega - r\Delta k)} \quad (I-83)$$

and, for $Q=0$,

$$\frac{0}{\beta \bar{\rho}_0^k}(H) = \frac{0}{\beta \bar{\rho}_0^k}(\infty) + \sum_s \left[\frac{0}{\beta \bar{\rho}_0^k}(H - H^{(s)}) - \frac{0}{\beta \bar{\rho}_0^k}(\infty) \right] \quad (I-84)$$

$\frac{0}{\beta \bar{\rho}_0^k}(\infty)$ is the solution of I-60 when the longitudinal quantities are the only ones kept ($Q=0$) ; this corresponds to a magnetic field such that

$$\Gamma_\beta(k) \ll \omega_\beta \ll \Delta \omega. \quad \left[\frac{0}{\beta \bar{\rho}_0^k}(H - H^{(s)}) - \frac{0}{\beta \bar{\rho}_0^k}(\infty) \right] \text{ represents the } s^{\text{th}} \text{ lateral}$$

saturation resonance. Its shape is given at all orders by I-60, and at fourth order by I-79.

When the modes are free running, there is no more modulation and the general solution is given by $\frac{0-k}{\beta \rho_Q} (H)$. On the longitudinal quantities appears only a "central saturation" ($H=0$) but no lateral saturation [4].

$$b/ \underline{g_a \neq g_b}$$

If the Landé factors are different, the modulations of $\bar{\rho}_a$ and $\bar{\rho}_b$ are not resonant for the same value of the field. Indeed, the first modulations of $\bar{\rho}_a$ appear when $-2\omega_a = 2g_a \mu_B H \Delta\omega$, and the first modulations of $\bar{\rho}_b$ when $2g_b \mu_B H \Delta\omega$. If $|\omega_a - \omega_b| \lesssim \Gamma_\beta(k)$, the equations I-81 are still valid ; but, as $\omega_a \neq \omega_b$, they are no more equivalent to the weak field equations. The saturation resonances from levels a and b are not centered on the same value of the field.

On the other hand, if $|\omega_a - \omega_b| \gg \Gamma_\beta(k)$, the non resonant transverse quantities can be eliminated from I-81. For instance, if the b transverse quantities are the only resonant ones, a coupling between the transverse alignments cannot exist. Even if $J_a + J_b > 2$, up to the fourth order, the modulated transverse alignment of b keeps a Lorentzian shape [38].

V. GENERAL CASE

When the laser polarization is elliptic, the study is much more complicated. In general, there is no more selection rule. All the density matrix tensorial orders are excited. In particular, at the second order in the electric field, the laser creates both orientation ($k=1$) and alignment ($k=2$), and couples them at higher orders : from the fourth order, the Hanle effects do not keep a Lorentzian shape. On the other hand, the saturation

resonances on the longitudinal quantities come from all the second order Hanle effects: transverse orientation ($\bar{\rho}_1^1$) and alignment ($\bar{\rho}_1^2, \bar{\rho}_2^2$).

The equations I-54 can be simplified if condition I-68 is fulfilled. There are no density matrix modulations in weak field ($\omega_\beta \ll \Delta\omega$). For $\omega_\beta \simeq -\Delta\omega/2$, only the even components are excited: for instance, at the second order, $\beta \bar{\rho}_2^2(1)$ modulated at the $\Delta\omega$ frequency. For $\omega_\beta \simeq -\Delta\omega$, at the second order, the laser creates $\beta \bar{\rho}_i^1(1)$ and $\beta \bar{\rho}_i^2(1)$ at the $\Delta\omega$ frequency, and $\beta \bar{\rho}_2^2(2)$ at the $2\Delta\omega$ frequency. And so on..... All these terms involve saturation resonances in the longitudinal quantities, at the fourth order. Thus, the shape of the "lateral saturations" is more complicated than in the linear polarization case.

The equations I-54 are entirely solvable, for every particular laser polarization and every particular transition. But, as the experimental studies have been performed for a linear polarization, we shall not analyse the general case in a more detailed way.

VI - VALIDITY OF THE APPROXIMATIONS - LIMITS OF THE THEORY.

In this section, we analyse in a detailed manner the validity of the approximations introduced in the third section.

A. Atomic transitions.

In a first part, we consider the case of visible or near infrared laser transitions of neutral atoms. More particularly, all the numerical values come from the following neon transitions (in Paschen notation): $3s_2 - 2p_4$ ($\lambda = 6328 \text{ \AA}$), $3s_2 - 2p_2$ ($\lambda = 6401 \text{ \AA}$), $3s_2 - 2p_1$ ($\lambda = 7305 \text{ \AA}$) and $2s_2 - 2p_1$ ($\lambda = 1.52 \mu$).

To write S as an integral, the conditions I-36 and I-37 are necessary. For the visible lines, I-37 is well verified in the usual experimental conditions. (For a two meters-long laser, $N \simeq 10-13$ for $\lambda = 7305 \text{ \AA}$, $\simeq 15$ for 6401 \AA

and ≥ 20 for 6328 \AA). On the other hand, if the atomic line width is greater than the mode spacing (éq. I-36), the holes structure of the atomic response vanishes (see figure 2). For a 2m-long laser cavity, $\Delta\omega$ is equal to 75 MHz. But the atomic linewidth is strongly broadened by the dephasing atomic collisions. By Lamb dip experiments on the 6328 \AA laser line, SMITH [39] measures a broadening $d\Gamma_{ab}/dp$ about 70 MHz/torr in a 7 : 1 mixture of He : Ne ; for the same mixture, SHANK [40] gives 90 MHz/torr. DIETEL [41] finds 61 MHz/torr for a 5 : 1 He : Ne mixture and CORDOVER [42] 58 MHz/torr for a 8 : 1 mixture. On the 1.52μ line, CARROLL [43] gives 80 MHz/torr for a 10 : 1 He : Ne mixture. Subsequently, the condition I-36 is valid in the usual laser pressure range (1 to 5 torrs) and the expression of S by means of an integral (equ. I-38) is well proved.

Now, let us consider the second set of conditions : $N\Delta\omega \gg \omega_z$, $p'\Delta\omega$, $s\Delta\omega$ (I-39). Most of the experimental results will concern the Hanle effect and the zero field "saturation resonance". In this case, I-39 is verified very well, because the magnetic field is weak : $|H| \lesssim 5$ Gauss and subsequently $|\omega_z| \lesssim 10$ MHz while $N\Delta\omega \simeq 1000$ to 2000 MHz. Moreover, as condition I-68 is valid in the usual experimental situation ($\Gamma_\beta(k) \simeq 10$ MHz and $\Delta\omega \simeq 80$ MHz [1][10]), the density matrix modulations are not resonant and $p' = s = 0$.

On the other hand, for the analysis of modulations and "lateral saturations", the validity of I-39 must be carefully studied. For the first modulations ($p=1$), $p\Delta\omega \simeq 80$ MHz and the resonant field corresponds to $\omega_z \simeq 40$ MHz : I-39 is still valid. But I-39 is less and less valid as the modulation order grows up and subsequently as the magnetic field at resonance becomes higher. To show the limits of the present theory, let us compare the results of section IV with the interpretation that DUMONT proposes for the saturation resonances using a more sophisticated fourth order perturbation calculation [4]. DUMONT

has shown that these resonances are produced by two phenomena.

1/ A population effect which is resonant when the σ^+ component of a laser mode and the σ^- component of another one interact with the atoms of same velocity (BENNETT hole crossing). The width of these resonances is $2\Gamma_{ab}$. In the BLA conditions ($\Gamma_{ab} > \Delta\omega$), these resonances are not resolved, as shown by both the theoretical calculations and the experimental results of DUMONT [4].

2/ A Zeeman coherence effect : to the second order, the laser creates a modulated transverse alignment, and, to the fourth order, this alignment produces unmodulated longitudinal quantities exhibiting resonances when the magnetic field is scanned. The saturation resonances appearing in section IV, have exactly the same origin. However, when the modes are phase-locked, in the BLA approximation, all the resonances have the same intensity, whereas the more realistic calculation of the reference [4] shows that, due to the finite number of modes, the intensity of the resonances slowly decreases when their order (p) grows (see figures 5,7,9 of ref. [4]). This feature agrees with the validity conditions of the B.L.A. : the modulation order must be much smaller than the modes number.

$N\Delta\omega \gg \Delta v$ is the last condition introduced in the BLA (eq. I-41). It is the most crude one because, for the usual neon laser lines, $N\Delta\omega$ is of the order of $2\Delta v$. This condition is necessary for the laser-induced transition probability, $S(v)$, to be independent of the velocity. Indeed there are other ways to get the velocity averaged equations, I-50-51, from the motion equations, I-35. For instance, it is sufficient that $S(v)$ and $\rho(v)$ are not correlated : the velocity average of $S(v)$. $\rho(v)$ is then written as a product of the two velocity averaged quantities $\overline{S(v)}$. $\overline{\rho(v)}$.

This situation is realized in the optical pumping of the ground state [29]. There are many collisions which change the velocity without disturbing the internal state of the atom. The velocity distribution is quickly thermalized and $\rho(v)$ is proportionnal to the Maxwell repartition function. To a certain extent, this situation may also be realized in the excited states when the fluorescence lines are strongly reabsorbed in the gas : in this case, it is the trapping of the fluorescence lines that ensures the thermalization of the velocity of the excited atoms.

Another possibility is that the intensities of the modes are fairly equal. Indeed, if all the modes have the same amplitude, we show in appendix B that, to get equations I-50, condition I-41 can be replaced by $N \Delta\omega \gg \Gamma_{ab}$.

In other respects, when the laser intensity grows, the correlations which may exist between $\rho(v)$ and $S(v)$ decrease. Indeed, the ρ dependence on the modes intensity is essentially non-linear. This non-linear behaviour softens off the depth difference of the Bennett holes coming from the difference between the modes intensities. Moreover, these holes are power-broadened and more overlapping. $\rho(v)$ comes nearer to the Maxwell distribution. On the other hand, $S(v)$ is always a linear function of the intensity of the modes : this explains the vanishing of the $S(v) - \rho(v)$ correlations. Subsequently, the BLA approximation is particularly convenient for high laser intensities.

In conclusion of this part, the use of the BLA equations seems to be correct for the atomic transitions.

b. Molecular transitions

Recently, a few molecular levels have been successfully pumped with ionic lasers. Mc CLINTOCK et al.[6] have observed the zero field level crossing in the excited $B^1 \pi_u$ state of the Na_2 molecule pumped by an argon-

ion laser. BROYER et al. [7] have studied the same effect in some excited states of I_2 with Ar^+ and Kr^+ lasers.

Is the BLA valid for these experiments? The width of the ion lasers is very large: $N\Delta\omega \approx 3000$ to 5000 MHz. The Doppler widths are about 300 MHz for I_2 and 800 MHz for Na_2 . Subsequently the condition I-41 is fulfilled: $N\Delta\omega \gg \Delta\nu$. On the other hand, due to the weak g values of these molecules, $N\Delta\omega$ is much greater than ω_2 . The principal difficulties come from the relative values of Γ_{ab} and $\Delta\omega$. In the pumping of molecules, the pressures are smaller (10^{-2} to 1 torr) than for the atoms, and the collision broadening of the optical linewidth must be weaker.

For the Na_2 experiments, Mc. CLINTOCK et al give $\Delta\omega = 60$ MHz and measure a natural width of the $B^1\pi$ state of about 25 MHz. The problem is that the effect of the dephasing collisions is not known (the authors do not give the experimental pressures). It is possible that the BLA conditions are fulfilled: this is necessary for the validity of the zero-field optical pumping theory of DRULLINGER and ZARE using a rate equation approach (see note [23]).

With regard to the I_2 molecule, the laser-saturated absorption experiments [44] show that the optical linewidth stays in the 1-10 MHz range as long as the pressure is lower than 1 torr. Due to the 100 MHz mode spacing, the BLA validity is highly unlikely. In particular, the Zeeman-tuned holes crossing effect must be taken into account. The observed saturation effects [45] cannot be explained in the frame of the present theory.

VII- CONCLUSION

In this paper, we have presented a theoretical study of the optical pumping with a multimode laser. The so-called "Broad-line approximation" allows

us to write a set of equations of motion which are theoretically solvable at all orders in the laser field. The fourth order solution has been analysed here and the results have been compared with previous theories. The validity of B.L.A. must be considered in a detailed way for each particular transition.

This theory seems well fitted to the laser pumping of the neon levels. We have entirely solved the motion equations in the case when the laser is linearly polarized and resonant for the following transitions : $J=0 - J=1$ [17], $J=1 - J=1$ [46] and $J=1 - J=2$ [33]. The experimental verifications have been worked out on the neon laser lines. They will be described in a detailed manner in following papers

Acknowledgments

The author wishes to thank Dr. M. DUMONT and Professor B. DECOMPS for many useful and stimulating discussions on the subject. He is grateful to Professor C. COHEN-TANNOUDJI for reading the manuscript and for his comments.

Standing wave pumping

The pumping experiments that we have performed, have been realized inside the laser cavity in order to take advantage of the high internal power density. Then the laser beam is represented by a standing wave and the field amplitude (I-15) is replaced by the sum of two opposite running waves :

$$\mathcal{E} = \sum_{\mu} \mathcal{E}^{\mu} \cdot e^{-i\omega_{\mu} t} \cdot (e^{ik_{\mu} r} - e^{-ik_{\mu} r}) \quad (\text{I-A1})$$

(In the previous definition, the positions of the laser mirrors are given by $r=0$ and $r=L$: $\mathcal{E}(r=0) = \mathcal{E}(r=L) = 0$). In the following, we only consider the phase-locked operation in weak magnetic field, when the density matrix modulations are off-resonance (see section IV).

Let us come back to the calculation of the stationary operation (section II-C) Equation I-28 becomes (with real \mathcal{E}^{μ})

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{ab}^{k'} &= [i(\omega - \omega_Z) - \Gamma_{ab}(k')] \cdot \rho_{ab}^{k'} + \\ &+ i P_{ab} \cdot \zeta_{Q'}^{k'}(\nu) \cdot \sum_{\mu} \mathcal{E}^{\mu} \cdot e^{i\omega_{\mu} t} (e^{-ik_{\mu} r} - e^{ik_{\mu} r}) \quad (\text{I-A2}) \end{aligned}$$

$\zeta_{Q'}^{k'}$ is assumed to be independent of time and position : this hypothesis will be " a posteriori" verified at the end of the calculation. The stationary solution of I-A2 is evident and, when replaced in I-20, leads to such expressions as :

$$\mathcal{E} \cdot \rho_{ab}^{k'} = i P_{ab} \cdot \zeta_{Q'}^{k'}(\nu) \cdot \sum_{\mu, \nu} \mathcal{E}^{\mu} \cdot \mathcal{E}^{\nu} \cdot e^{i(\omega_{\mu} - \omega_{\nu}) t}$$

$$\times \left\{ \frac{e^{-i(k_\mu - k_\nu)r}}{\Gamma_{ab}(k') + i[\omega_\mu - \omega + Q'\omega_Z - k_\mu v]} + \frac{e^{+i(k_\mu - k_\nu)r}}{\Gamma_{ab}(k') + i[\omega_\mu - \omega + Q'\omega_Z + k_\mu v]} \right. \\
 \left. - \frac{e^{-i(k_\mu + k_\nu)r}}{\Gamma_{ab}(k') + i[\omega_\mu - \omega + Q'\omega_Z - k_\mu v]} - \frac{e^{+i(k_\mu + k_\nu)r}}{\Gamma_{ab}(k') + i[\omega_\mu - \omega + Q'\omega_Z + k_\mu v]} \right\} \quad (\text{I-A3})$$

The two first terms in the bracket correspond to the running wave terms for every propagation direction. The last terms correspond to the successive interaction of every running wave field with the atom : they present a spatial modulation of period $\lambda/2$, which is due to the standing wave features of the field inside the cavity. The source term of frequency $s\Delta\omega$ is obtained from the sum on μ and ν in I-A3, with the condition $\omega_\mu - \omega_\nu = s\Delta\omega$:

$$i[P_{ab}]^{-1} \cdot {}_{ab}S_{Q'}^{k'}(v) \cdot e^{is\Delta\omega t} \left\{ {}_0S_{Q'}^{k'}(v, \omega_Z) \cdot e^{-is\Delta k \cdot r} \right. \\
 \left. + {}_0S_{Q'}^{k'}(-v, \omega_Z) \cdot e^{+is\Delta k \cdot r} - {}_0R_{Q'}^{k'}(r, v, \omega_Z) \cdot e^{+is\Delta k \cdot r} - {}_0R_{Q'}^{k'}(-r, -v, \omega_Z) \cdot e^{-is\Delta k \cdot r} \right\} \quad (\text{I.A4})$$

where S is defined by I-34 and R by

$${}_0R_{Q'}^{k'}(r, v, \omega_Z) = \sum_{\mu} \frac{P_{ab}^2 \cdot \xi^\mu \cdot \xi^{\mu-s} \cdot e^{-2ik_\mu r}}{\Gamma_{ab}(k') + i[\omega_\mu - \omega + Q'\omega_Z - kv]} \quad (\text{I-A5})$$

When put back into I-20, S introduces in $\beta^{\rho Q^k}$ a term proportional to

$${}_0S_{Q'}^{k'}(v, \omega_Z) \cdot [\Gamma_{\beta}(k) + i(Q\omega_{\beta} + s\Delta\omega)]^{-1} \quad (\text{I-A6})$$

and R a term proportional to

$$S_{0R}^{k'}(r, v, \omega_z) \cdot [\Gamma_{\beta}(k) + i(Q\omega_{\beta} + s\Delta\omega - 2\bar{k}v)]^{-1} \quad (\text{I-A7})$$

We have neglected the variations of the Doppler effect with the optical frequency ($s \cdot \Delta k \cdot v < 10^{-3}$ MHz and $\Gamma_{\beta}(k) \approx 10$ MHz - See note [22])

Let us analyse these last expressions more precisely

1) Contrary to S, R depends on position. Let us study the behaviour of R when r varies between 0 and L.

$$\text{If } r, L-r \gg r_0 = \frac{c}{2\Gamma_{ab}} = \frac{\Delta\omega}{2\pi \Gamma_{ab}} L \quad (\text{I-A8})$$

the phase factor, $e^{-2ik_{\mu}r}$, is a rapidly varying function of μ in comparison of the denominator of I-A5 and R vanishes. On the other hand, for $0 < r \lesssim r_0$, the terms of I-A5 vary slowly with μ and we can replace the sum by an integral. In BLA ($N \Delta \omega \gg \omega_z$, $\bar{k}u$, Γ_{ab} - Constant modes intensity :

($\& \mu$)² = I/N), R is given by

$$R(\mp r) = \frac{P_{ab}^2 \cdot I}{N} \int_{-N/2}^{+N/2} \frac{e^{\pm 2i(\bar{k} + x \Delta k) \cdot r}}{\Gamma_{ab} + ix \Delta \omega} dx \quad (\text{I-A9})$$

Using $x = (2 \Delta k r)^{-1} \cdot y$, we easily obtain

$$R(\mp r) = \frac{\gamma}{\pi} \cdot e^{\pm 2i\bar{k}r} \int_{-r/r_1}^{+r/r_1} \frac{e^{\pm iy}}{\frac{r}{r_0} + iy} dy \quad (\text{I-A10})$$

where γ and r_0 are given by I-46 and I-A8, and where a second characteristic length has been introduced :

$$r_1 = \frac{c}{N \Delta \omega} = \frac{L}{N\pi} \quad (\text{I-A11})$$

To find an order of magnitude of these lengths, let us consider the case when

$L=2m$, $\Gamma_{ab} = 100$ MHz and $N=14$ ($N\Delta\omega = 1050$ MHz). Then r_0 is equal to 24 cm and r_1 to 4.5 cm. Two cases are possible.

a) If r is much greater than r_1 , the limits of integral I-A 10 can be assumed to be infinite. This integral is easily calculated by means of an integration in the complex plane :

$$R(r) = 0 \quad \text{and} \quad R(-r) = 2\gamma \cdot e^{2i\bar{k}r} \cdot e^{-r/r_0} \quad (\text{I-A 12})$$

b) If r is much smaller than r_0 , $(r/r_0 + iy)^{-1}$ can be replaced by $\pi\delta(y) - i\mathcal{P}(1/y)$, where δ is the Dirac delta function and \mathcal{P} the Cauchy principal value. Using this property, we find

$$R(\pm r) = \gamma \cdot e^{\pm 2i\bar{k}r} \cdot \left\{ 1 \pm \frac{2}{\pi} \int_0^{r/r_0} \frac{\sin x}{x} dx \right\} \quad (\text{I-A 13})$$

The variations of R are represented in figure 6. $|R(r)|$ decreases from $\gamma(r=0)$ to zero ($r \gg 2r_1$). $|R(-r)|$ grows from $\gamma(r=0)$ to about $2\gamma(r \approx 2r_1)$, and then decreases like $2\gamma \cdot \exp(-r/r_0)$.

For $0 < L-r < r_0$, the R values are reversed.

What is the physical meaning of these results ? In the phase-locked operation, the laser field may be represented by a pulse which oscillates between the two mirrors. This pulse has a spatial extension of the order of $r_1 = c(N\Delta\omega)^{-1}$ (see section III-0). The time that the laser pulse needs to go from the atom to the laser mirror and to come back is equal to $\tau = 2r/c$. The condition $r < r_0$ means that τ is smaller than the optical coherence lifetime, $(\Gamma_{ab})^{-1}$. If $r < r_0$, the pulse when propagating towards the negative values of r , has enough time, within the optical coherence lifetime, to interact with an atom, to go to the left-hand mirror and to come back to the atom in order to interact a second time. Subsequently,

a) If $r, L-r \gg r_0$ (eq. I-A 8), the optical coherence disappears before the pulse come back and R vanishes.

b) If $r_1 \ll r \lesssim r_0$, the previous process is possible when the

first interaction with the pulse occurs when it is propagating towards the left-hand mirror : $R(-r)$ is different from zero (eq. I A-12). $R(r)$ vanishes because it corresponds to a first interaction with a pulse going away from this mirror. For $L-r_0 < r < L-r_1$, the arguments are reversed.

c) $r \leq r_1$. As r_1 is the spatial width of the pulse, the atom is inside the area of the pulse reflection on the left-hand mirror. The atom can interact simultaneously with the front of the pulse which has been reflected, and with the tail which has not yet been reflected : all the processes are possible, as this is shown by equation I-A 13.

2) Now let us consider the resonant denominators of I-A 6 and I-A 7. For an atom of velocity v , the spatial modulations of the standing wave field (term $e^{-2ik_\mu r}$ in I-A 5) imply the time oscillations of the density matrix at frequency $2k_\mu v$. This is the reason why this frequency appears in the resonant denominator of I-A 7. As S corresponds to two successive interactions with the same travelling wave, this velocity dependence does not appear in I-A 6.

a) For the zero frequency component ($s=0$), the right hand term of I-A 6 is of the order of $(\Gamma_\beta(k))^{-1}$ and is much greater than the similar term of I-A 7 which is of the order of $(\bar{K}u)^{-1}$. More precisely, in zero magnetic field, after the average on the velocity distribution, the ratio of the two terms is equal to $\Gamma_\beta(k) \cdot \sqrt{\pi}/2\bar{K}u$ ($\approx 10^{-2}$ for the usual visible transitions). As $u/\Gamma_\beta(k)$ is the mean free path of an atom, this means that the mean free path is much greater than the laser wavelength. During its lifetime, an atom travels across several wavelengths and the spatial modulations vanish in the average. To sum up, after the velocity average, the 0R contribution is much smaller than the 0S one and we neglect it. [47]

b) On the other hand, in a weak magnetic field, the modulations are negligible. Indeed, the denominator of I-A 6 is off-resonance. The denominator of I-A 7 is resonant for such a velocity that $Q\omega_B + s\Delta\omega - 2\bar{k}v = 0$. But, after the velocity average, this term is of the order of the zero frequency term, which is negligible with regard to the 0S contribution. Let us point out that, when the modes are free running, as in section III-C, the modulations vanish by interference, whatever the magnetic field may be.

Finally, if we only keep the 0S contributions, I-A 3 is reduced to

$$\& \cdot_{ab} \rho_{Q'}^{k'} = i \cdot [P_{ab}]^{-1} \cdot \cdot_{ab} \zeta_{Q'}^{k'}(v) \cdot [{}^0S_{Q'}^{k'}(v, \omega_Z) + {}^0S_{Q'}^{k'}(-v, \omega_Z)] \quad (\text{I-A } 14)$$

In BLA, S is equal to γ . When I-A 14 is put back into I-20, we obtain the BLA equations (I-50) where γ is replaced by 2γ . The effect of a standing wave pumping is only doubling the pumping rate of the travelling wave : strictly speaking, there is no real standing wave effect, in BLA (contrary to the case of a monomode laser). On the other hand, the shape of I-A 14 establishes the validity of the starting assumption, namely the independence of ρ on time and position.

APPENDIX B :Finite laser spectral width

In this appendix, our purpose is to study the case when condition I-41 is not fulfilled, i.e. when the laser spectral width, $N\Delta\omega$, is not much larger than the Doppler width, $\bar{k}u$. However, we still assume that $N\Delta\omega \gg \Gamma_{ab} \gtrsim \Delta\omega$. We consider the case of weak magnetic fields, when the density modulations are off-resonance. Subsequently, the response function of the atomic system is given by equation I-39. If, in addition, the modes are assumed to have the same intensity ($(\mathcal{E}^{\mu})^2 = I/N = \gamma\Delta\omega/\pi P_{ab}^2$) and the laser to be centered on the atomic resonance frequency ($\omega = \bar{\omega}$), S can be written as :

$$S(v) = \frac{\gamma\Delta\omega}{\pi} \int_{-N/2}^{+N/2} \frac{dx}{\Gamma_{ab} + i(x\Delta\omega - \bar{k}v)} \quad (\text{I-B1})$$

The integration is evident and we obtain :

$$S(v) = \frac{\gamma}{\pi} \left\{ \tan^{-1} y(v) + \tan^{-1} y(-v) - \frac{1}{2} \ln \left[\frac{1 + y^2(v)}{1 + y^2(-v)} \right] \right\} \quad (\text{I-B2})$$

where

$$y(v) = \frac{N\Delta\omega - 2\bar{k}v}{2\Gamma_{ab}} \quad (\text{I-B3})$$

The real part of S , which corresponds to real laser-induced transitions, is an even function of the velocity. The imaginary part (contribution of the virtual transitions) is odd. Since we look for the mean density matrix, we shall neglect the imaginary part which vanishes in the velocity average. Let us point out that, for standing waves (experimental case), $S(v)$ is replaced by $S(v) + S(-v)$ (equation I-A14) : the imaginary part disappears independently of the velocity average.

On the other hand, in the Doppler-limit approximation ($N\Delta\omega, \bar{k}u \gg \Gamma_{ab}$), because of the properties of function \tan^{-1} , the real part is equal to

$$S(v) = \gamma \cdot s(v) \quad (\text{I-B4})$$

where $s(v) = 1$ if $-N\Delta\omega < 2\bar{k}v < N\Delta\omega$

$$s(v) = 0 \quad \text{everywhere else} \quad (\text{I-B5})$$

Indeed, for $v = \pm N\Delta\omega/2\bar{k}$, $S(v)/\gamma$ grows from zero to one in a velocity range of the order of $\Delta v = \Gamma_{ab}/\bar{k}$. In the Doppler-limit, the contributions of the atoms having such velocities to the total density matrix are weak. Neglecting the transition ranges, we obtain I-B5 for $s(v)$.

In these conditions, the equations of motion of the atomic system become (with the notations of equations I-60 - 63)

$$\begin{aligned} \left[\Gamma'_b(k) + iQ\omega_b \right] \cdot \rho_{bQ}^k(v) &= \gamma'_b(k) \cdot W_M(v) \cdot \rho_{bQ}^k + \frac{nY}{\sqrt{3}} \cdot \rho_{bQ}^k \cdot s(v) \cdot W_M(v) \\ &+ \gamma \cdot s(v) \cdot \sum_{k'', Q''} \left[\rho_{ba}^{h_{QQ''} k k''} \cdot \rho_{Q''}^{k''}(v) - \rho_{ba}^{h_{QQ''} k k''} \cdot \rho_{Q''}^{k''}(v) \right] \end{aligned} \quad (\text{I-B6})$$

and similar equations for level a.

Function $s(v)$ appears in the laser-atoms interaction : as the laser spectral width is not larger than the Doppler width, there are atomic velocities for which the atom does not interact with the laser. But these atoms may be excited by the velocity diffusion processes. The atomic density has the following shape :

$$\rho_{bQ}^k(v) = \left[\rho_{bQ}^L \cdot s(v) + \rho_{bQ}^D \right] \cdot W_M(v) \quad (\text{I-B7})$$

where ρ_{bQ}^L represents the atoms that have such a velocity that they interact with the laser and ρ_{bQ}^D represents the contribution of the velocity diffusion processes. This leads to a set of coupled equations :

$$\left[\Gamma'_b(k) + iQ\omega_b \right] \cdot \frac{L}{b} \rho_Q^k = \frac{n\gamma}{\sqrt{3}} \cdot b^g_Q^k$$

$$+ \gamma \sum_{k'', Q''} \left[b_{a h Q Q''} \cdot \left(\frac{L}{a} \rho_{Q''}^{k''} + \frac{D}{a} \rho_{Q''}^{k''} \right) - b_{b h Q Q''} \cdot \left(\frac{L}{b} \rho_{Q''}^{k''} + \frac{D}{b} \rho_{Q''}^{k''} \right) \right] \quad (\text{I-B8})$$

and

$$\left(\Gamma_b(k) + iQ\omega_b \right) \cdot \frac{D}{b} \rho_Q^k = \bar{s} \cdot \gamma'_b(k) \cdot \frac{L}{b} \rho_Q^k \quad (\text{I-B9})$$

where

$$\bar{s} = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{N\Delta\omega/2\bar{k}u} e^{-x^2} \cdot dx \quad (\text{I-B10})$$

and $\Gamma_b(k) = \Gamma'_b(k) - \gamma'_b(k)$ (see equation I-17)

In general, these equations are not equivalent to the BLA equations. However, for two particular cases, this equivalence is fulfilled.

1) Weak velocity diffusion

It is the case of excited levels, when the fluorescence trapping is negligible. If the velocity diffusion is weak, $\gamma'_\beta(k)$ is much smaller than $\Gamma_\beta(k)$. Then we can neglect $\frac{D}{\beta} \rho$, and the equations of motion for $\frac{L}{\beta} \rho$ are strictly similar to the BLA equations (with $\Gamma_\beta = \Gamma'_\beta$).

2) Strong velocity diffusion

In general, it is the case of the optical pumping of an atomic ground state. When $\gamma'_\beta(k)$ is much larger than $\Gamma_\beta(k)$, the redistribution of the atomic velocities is very quick : the repartition function of the velocities is Maxwellian, whatever the laser lineshape may be. In this case, the equations of motion for $\frac{-k}{\beta} \rho_Q = \frac{D}{\beta} \rho_Q + \frac{L}{\beta} \rho_Q \cdot \bar{s}$ are the BLA equations, where the pumping rate, γ , is replaced by $\overline{S(v)} = \bar{\gamma s}$.

APPENDIX C :

Analogy with the ordinary optical pumping

The optical pumping of an atomic ground state has been studied by BARRAT and COHEN-TANNOUJJI [29][48]. Since the population of the excited level is very weak, they have neglected the stimulated emission. The contribution of the light absorption to the evolution of the atomic density matrix has the following shape (equation III-A-1 of reference [48])

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} a^{\rho}_{\mu\mu'} &= - \left(\frac{1}{2T_p} + i\Delta E' \right) \sum_{\mu''} A_{\mu\mu''} \cdot a^{\rho}_{\mu''\mu'} \\ &- \left(\frac{1}{2T_p} - i\Delta E' \right) \sum_{\mu''} a^{\rho}_{\mu''\mu} \cdot A_{\mu''\mu'} \end{aligned} \quad (\text{I-C1})$$

$$\frac{d}{dt} b^{\rho}_{mm'} = \frac{2J_b+1}{T_p} \sum_{\substack{\mu\mu' \\ qq'}} (-)^{\mu-\mu'} \cdot e_{-q} \cdot e_{q'}^* \begin{pmatrix} 1 & J_a & J_b \\ q & \mu & -m \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & J_a & J_b \\ -q' & \mu' & -m' \end{pmatrix} \cdot a^{\rho}_{\mu\mu'} \quad (\text{I-C2})$$

where

$$A_{\mu\mu'} = (2J_b+1) \sum_{mqq'} (-)^{\mu-\mu'} \cdot e_{-q} \cdot e_{q'}^* \begin{pmatrix} 1 & J_a & J_b \\ q & \mu' & -m \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 & J_a & J_b \\ -q' & \mu & -m \end{pmatrix} \quad (\text{I-C3})$$

In these equations, we have called a the fundamental level and b the excited level, to make the comparison with the BLA equations easier. The pumping time, T_p , and the frequency shift, $\Delta E'$, are given by equations III-A-2 of reference [48]. e_q is the standard component of the light polarization. $a^{\rho}_{\mu\mu'}$ and $b^{\rho}_{mm'}$ are the density matrix components in the Zeeman basis, $|J_a \mu\rangle$ and $|J_b m\rangle$. Their relation with the tensorial components is given by :

$$\beta^{\rho}_{Qk} = \sqrt{2k+1} \sum_{m'm} (-)^{J_\beta-m'} \begin{pmatrix} J_\beta & J_\beta & k \\ m' & -m & -Q \end{pmatrix} \cdot \beta^{\rho}_{m'm} \quad (\text{I-C4})$$

When I-C4 is put back into I-C1-2, the following equations are obtained after some algebra using the symmetry relation of the 3J and 6J coefficients (MESSIAH [25] pp. 907-917) :

$$\frac{d}{dt} a^{\rho k} = -(2J_b + 1) \sum_{k''Q''qq'} (-)^{k+k''} \left[e_{-q} \cdot e_q^* \left(\frac{1}{2T_p} - i\Delta E' \right) + (-)^{k+k''+Q+Q''} e_{-q} \cdot e_q^* \left(\frac{1}{2T_p} + i\Delta E' \right) \right] \times \begin{matrix} qq' & kk'' \\ a & H_{QQ''} \end{matrix} \cdot a^{\rho k''} \quad (I-C5)$$

$$\frac{d}{dt} b^{\rho k} = \frac{2J_b + 1}{T_p} \sum_{k''Q''qq'} e_{-q} \cdot e_q^* \cdot \begin{matrix} qq' & kk'' \\ ba & H_{QQ''} \end{matrix} \cdot a^{\rho k''} \quad (I-C6)$$

where the H coefficients are defined in I-52, 53. For vanishing $\Delta E'$, these equations are similar to the absorption part of the right-hand side of equations I-54, if we set [49] :

$$\gamma = \frac{2J_b + 1}{2T_p} \quad (I-C7)$$

On the other hand, if the imaginary part of S (term δ in I-52) had been kept in the BLA equations, the equivalence would have been maintained by means of the following relation :

$$\delta = (2J_b + 1) \Delta E' \quad (I-C8)$$

Due to this analogy between the laser pumping and the usual optical pumping, γ and δ may be considered as the probability of real and virtual laser-induced transitions.

APPENDIX D :Optical coherences coupling due to the anomalous Zeeman effect

In this appendix, we analyse the coupling between the optical coherences which is due to the anomalous Zeeman effect. For the sake of simplicity, we consider the case of a $J_b = 1 - J_a = 1$ transition, when the laser is linearly σ -polarized. Extension to a more general case would not present any difficulties. The laser is assumed to be free-running (the phase-locked operation would be analysed in a similar way). In these conditions, the evolution of the optical coherence is given by (equations I-20c and I-29, 30)

$$\dot{\rho}_{Q'}^1 = \left[i(\omega - Q'\omega_Z) - \Gamma_{ab}(1) \right] \cdot \rho_{Q'}^1 - i\omega_{AZ} \cdot \rho_{Q'}^2 + iP_{ab} \mathcal{E}^* \cdot \zeta_{Q'}^1, \quad (\text{I-D1})$$

$$\dot{\rho}_{Q'}^2 = \left[i(\omega - Q'\omega_Z) - \Gamma_{ab}(2) \right] \cdot \rho_{Q'}^2 - i\omega_{AZ} \cdot \rho_{Q'}^1 + iP_{ab} \mathcal{E}^* \cdot \zeta_{Q'}^2, \quad (\text{I-D2})$$

where $Q' = \pm 1$ and

$$\omega_{AZ} = \frac{\omega_a - \omega_b}{2} \quad (\text{I-D3})$$

The stationary solution is easily obtained :

$$\rho_{Q'}^1 = iP_{ab} \cdot \sum_{\mu} \mathcal{E}_{\mu}^* \cdot e^{i(\omega_{\mu} t - k_{\mu} r)} \times \frac{\left[\Gamma_{ab}(2) + i(\omega_{\mu} - \omega + Q'\omega_Z - k_{\mu} v) \right] \cdot \zeta_{Q'}^1 - i\omega_{AZ} \cdot \zeta_{Q'}^2}{\left[\Gamma_{ab}(1) + i(\omega_{\mu} - \omega + Q'\omega_Z - k_{\mu} v) \right] \left[\Gamma_{ab}(2) + i(\omega_{\mu} - \omega + Q'\omega_Z - k_{\mu} v) \right] + \omega_{AZ}^2} \quad (\text{I-D4})$$

and a similar expression for $\rho_{Q'}^2$. In section III, we have seen that in the BLA conditions ($N\Delta\omega \gg \Gamma_{ab}(k') \gtrsim \Delta\omega$), the atomic response is not very dependent on the values of $\Gamma_{ab}(k')$. Without restricting the generality, we shall assume $\Gamma_{ab}(1) = \Gamma_{ab}(2) = \Gamma_{ab}$. Then the denominator of I-D4 is a product of two factors :

$$D_{\mu}^{\pm} = \left[\Gamma_{ab} + i(\omega_{\mu} - \omega - k_{\mu} v + Q' \omega_Z \pm \omega_{AZ}) \right]^{-1} \quad (\text{I-D5})$$

and I-D4 becomes :

$$ab \rho_{Q'}^1 = \frac{i P_{ab}}{2} \sum_{\mu} \mathcal{E}^{\mu*} \cdot e^{i(\omega_{\mu} t - k_{\mu} r)} \cdot \left\{ ab \zeta_{Q'}^1 (D_{\mu}^+ + D_{\mu}^-) + ab \zeta_{Q'}^2 (D_{\mu}^+ - D_{\mu}^-) \right\} \quad (\text{I-D6})$$

When this is replaced in I-20a-b, the source-term has the following shape :

$$\mathcal{E} \cdot ab \rho_{Q'}^1 = i [2 P_{ab}]^{-1} \cdot \left\{ [S(v, \omega_Z, \omega_{AZ}) + S(v, \omega_Z, -\omega_{AZ})] \cdot ab \zeta_{Q'}^1 + [S(v, \omega_Z, \omega_{AZ}) - S(v, \omega_Z, -\omega_{AZ})] \cdot ab \zeta_{Q'}^2 \right\} \quad (\text{I-D7})$$

where

$$S(v, \omega_Z, \omega_{AZ}) = \sum_{\mu} \frac{P_{ab}^2 \cdot |\mathcal{E}^{\mu}|^2}{\Gamma_{ab} + i(\omega_{\mu} - \omega - k_{\mu} v + Q' \omega_Z + \omega_{AZ})} \quad (\text{I-D8})$$

Since the laser is free-running, we have neglected the modulated contributions in I-D7 and we have set $\mu = v$. In BLA, S is expressed as an integral.

Since the frequency limits of this integral are $\pm N \Delta \omega / 2$, ω_{AZ} will be negligible if condition I-59 is fulfilled :

$$\omega_{AZ} \ll N \Delta \omega \quad (\text{I-D9})$$

In such a condition, S does not depend on ω_{AZ} and I-D7 is equivalent to I-33 (with $p' = s = 0$).

References and Footnotes

- [¹] B. DECOMPS and M. DUMONT (a) J. de Phys. (1968), 29, 443
(b) I.E.E.E. J. of Quant. Electronics (1968)
QE4, 916
- [²] M. TSUKAKOSHI and K. SHIMODA, J. Phys. Soc. Japan (1969), 26, 758
- [³] B. DECOMPS and M. DUMONT, Compt. Rend, (1967), 265B, 249
- [⁴] M. DUMONT, J. de Phys. (1972), 33, 971
- [⁵] M. DUMONT, Thesis, University of Paris (1971)
- [⁶] M. Mc CLINTOCK, W. DEMTRODER and R.N. ZARE, J. Chem. Phys. (1969)
51, 5509
- [⁷] M. BROYER, J. VIGUE and J.C. LEHMANN, Compt. Rend. (1971), 273B, 289
- [⁸] M. DUMONT and B. DECOMPS, J. de Phys. (1968) 29, 181
- [⁹] S. STENHOLM and W.E. LAMB, Phys. Rev. (1969), 181, 618
B.J. FELDMAN and M.S. FELD, Phys. Rev. (1970), A1, 1375
H.K. HOLT, Phys. Rev. (1970) A2, 233
- [¹⁰] M. DUCLOY, E. GIACOBINO-FOURNIER and B. DECOMPS, J. de Phys. (1970)
31, 533
- [¹¹] This formulation assumes the laser beam to be a plane wave and the excitation discharge to be spatially homogeneous. The Planck constant \hbar , is taken equal to one.
- [¹²] M. DUCLOY and M. DUMONT, J. de Phys. (1970), 31, 419
- [¹³] A. OMONT, J. de Phys. (1965), 26, 26
- [¹⁴] U. FANO, Rev. of Mod. Phys. (1957), 29, 74

$\alpha\beta T_q^{(k)}$ can be defined from the Zeeman sublevels $|J_\alpha m_\alpha\rangle$ by means of the Clebsch-Gordan coefficients

$$\alpha\beta T_q^{(k)} = \sum_{m_\alpha, m_\beta} (-)^{J_\beta + m_\beta} \langle J_\alpha J_\beta m_\alpha m_\beta | kq \rangle \cdot |J_\alpha m_\alpha\rangle \langle J_\beta -m_\beta|$$

The irreducible tensors are then normalized

$$\text{Tr} \left[\alpha\beta T_q^{(k)} \cdot \alpha'\beta' T_{q'}^{(k')\dagger} \right] = \delta_{\alpha\alpha'} \cdot \delta_{\beta\beta'} \cdot \delta_{kk'} \cdot \delta_{qq'}$$

and their reduced matrix element is

$$\langle J_\alpha || \alpha\beta T_q^{(k)} || J_\beta \rangle = \delta_{\alpha\alpha'} \delta_{\beta\beta'} \cdot \sqrt{2k+1}$$

- [¹⁵] The polarization vector may be complex (case of a circular polarization). Let us remind the definition of the standard components, e_q :
- $$e_0 = e_z, \quad e_{\pm 1} = \mp \frac{1}{\sqrt{2}} (e_x \pm ie_y)$$
- [¹⁶] S.G. RAUTIAN- J.E.T.P. (1966), 51, 1176 (Soviet Phys. JETP (1967), 24, 788)
- [¹⁷] M. DUCLOY. Opt. Commun. (1971), 3, 205
- The problem of the fluorescence trapping has been analysed by the author in a communication to the Seventh International Quantum Electronics Conference, Montreal (Canada), 8-11th May 1972. At the same time an account of the theoretical work presented in this article has been given : M. DUCLOY, I.E.E.E., J. of Quant. Electronics (1972), QE8 , 560
- [¹⁸] P.R. BERMAN and W.E. LAMB Jr., Phys. Rev. (1970), A2 , 2435
- [¹⁹] G.A. TSONGAS , S.P. KOUTSOYANNIS and K. KARAMCHETI, J. Phys. B (1972) 5, 397
- [²⁰] J. BROCHARD and R. VETTER, Phys. Lett. (1970), 33A , 398
- [²¹] The exact expression of $\beta_{\rho Q}^{(2)k}(v, v, \mu)$ is given in [⁵]
- [²²] In I-34, we have neglected the variations of the Doppler effect, $(k_{\mu} + p' \Delta k)v$, with the optical frequency, $\omega_{\mu} + p' \Delta \omega$, and we have set $k_{\mu} + p' \Delta k = \bar{k}$. These variations are 10^6 times smaller than the frequency variations. This is equivalent to neglect the Doppler effect at frequencies $\omega_{\mu} - \omega_{\nu}$.
- $$(k_{\mu} - k_{\nu})v \simeq (\omega_{\mu} - \omega_{\nu}) \cdot \frac{u}{c} \simeq 10^{-6} (\omega_{\mu} - \omega_{\nu})$$
- These approximations are only valid for a travelling laser wave (For a standing wave, see Appendix A)
- [²³] The introduction of a laser-induced transition probability which is independent of the atomic velocity leads to equations equivalent to those usually called "rate equations". These equations have been used by several authors (see, for instance, R.E. DRULLINGER and R.N. ZARE, J. Chem. Phys. (1969), 51, 5532; also, P.W. SMITH, I.E.E.E. J. of Quantum Electronics (1966), QE2, 62). The use of these rate equations is only right in the B.L.A. such as described in section III.

[²⁴] Using the symmetry relations of the 3J and 6J coefficients (MESSIAH [²⁵] p.p. 907-917), we can get

$$q' q_H k k'' = (-)^{k+k''+Q+Q''} \cdot \frac{q q' H k k''}{\beta \alpha' Q Q''}$$

$$q' q_H k'' k = \frac{q q' H k k''}{\beta \alpha' -Q -Q''} = (-)^{k+k''} \cdot \frac{-q -q' H k k''}{\beta \alpha' Q Q''}$$

$$q' q_H k'' k = (-)^{k+k''} \cdot \frac{q q' H k k''}{\beta \alpha' -Q -Q''} = -q -q' \frac{q q' H k k''}{\beta \alpha' Q Q''}$$

[²⁵] A. MESSIAH, Mécanique Quantique, Dunod édit., Paris (1964)

[²⁶] The following relation is used : $\beta_{-Q}^{\rho k}(-p) = (-)^Q \cdot \beta_{Q}^{\rho k^*}(p)$
(it is deduced from I-27 and from $\beta_{-Q}^{\rho k} = (-)^Q \cdot \beta_{Q}^{\rho k^*}$)

[²⁷] M. DUCLOY, Thesis, University of Paris (1973)

[²⁸] W.R. BENNETT Jr, Phys. Rev. (1962), 126, 580

[²⁹] J.P. BARRAT and C. COHEN-TANNOUJJI, J. de Phys., (1961), 22, 329 and 443

[³⁰] Relation $Q=0$ is imposed by the selection rules, whatever the approximations are. The only magnetic field dependence comes from the coupling between the different optical coherences (anomalous Zeeman effect, equation I-20c). In the BLA conditions ($\Gamma_{ab} \gg \Delta\omega$ and $|\omega_a - \omega_b| \ll N\Delta\omega$), this coupling disappears and the equations do not depend on H. But in the contrary case ($\Gamma_{ab} \ll \Delta\omega$), a coupling appears for $|\omega_a - \omega_b| \sim \Gamma_{ab}$ and the density matrix may depend on the magnetic field.

[³¹] M. DUCLOY, Thèse de Troisième cycle, University of Paris (1968)

[³²] Let us point out that this property is due to the selection rules and is maintained even if BLA is not valid. Nevertheless BLA is necessary to get the homographic variations of $\bar{\zeta}_{ab}^{-1}$ with γ (eq. I-73).

On the other hand, we will dwell on the fact that we only consider the density matrix modifications which are induced by the laser

irradiation. The laser-off populations of the atomic levels have been eliminated from the beginning (see equation I-23).

[³³] M. DUCLOY, M.P. GORZA and B. DECOMPS : "Higher order non linear effects in a gas laser : creation and detection of an hexadecapole moment in the neon $2p_4$ level" submitted for publication in Physical Review Letters.

[³⁴] For high J values (case of molecules pumping), $h_{b22}^{22} \simeq 0.571(2J_b+1)^{-1}$ if $J_a = J_b \pm 1$, or $0.857(2J_b+1)^{-1}$, if $J_a = J_b$. The power-broadening, $h_{b22}^{22} \cdot \gamma$, remains finite because γ behaves like $|P_{ab}|^2 \propto (2J_b+1) \cdot \gamma_{ba}$ (γ_{ba} is the b-a transition probability by spontaneous emission).

Nevertheless, let us point out that, in molecule pumping, the BLA conditions are not always fulfilled (see section VI).

[³⁵] That is the case for the Xenon laser lines. The coupling between the transverse alignments has been experimentally observed by M. TSUKAKOSHI and K. SHIMODA [²].
However, in addition to the laser-induced coupling, a very strong coupling exists which is induced by the spontaneous emission from b to a [¹²] (See also M. DUCLOY, Compt. Rend. (1969), 268B, 1575)

[³⁶] To a certain extent, the present work arises from the experimental observation of this independence between the power broadening and the collision broadening of the Hanle effect (B. DECOMPS, Thesis, Paris, 1969).

[³⁷] Let us point out that this property is valid at all orders in the electric field, if the relaxation processes do not induce any transitions between the Zeeman sublevels. On the other hand, the alignment of a may be coupled to that of b by spontaneous emission from b to a. [¹⁰]

[³⁸] If $J_\beta \geq 2$, $\beta \bar{\rho}_4^4$ can be created by the laser at higher orders in the electric field [³³]. From I-83, $\beta \rho_4^4$ only presents modulations at the even frequencies, $2s \Delta\omega$. Is it possible to induce odd frequency modulations, at $\Delta\omega$ for instance? This modulation

should be resonant for $\omega_B = -\Delta\omega/4$. If $g_a \approx g_b$ and $\Gamma_B(k) \ll \Delta\omega$, the transverse alignment modulations are resonant for $\omega_B = -s \cdot \Delta\omega/2$. When $\omega_B = -\Delta\omega/4$ there is no transverse alignment and subsequently no ρ_4^4 .

Nevertheless, if $\Gamma_B(k) \approx \Delta\omega$, it will be possible to create modulations of ρ_4^4 at the $\Delta\omega$ frequency.

Another possibility is that $g_a = 2g_b$; $\omega_B = -\Delta\omega/4$ is equivalent to $\omega_a = -\Delta\omega/2$. For such a value of magnetic field, to the second order, the laser induces, into the a level, a transverse alignment modulated at the $\Delta\omega$ frequency, and, subsequently, to the fourth order, a ρ_4^4 component modulated at the same frequency.

- [³⁹] P.W. SMITH, J. Appl. Phys. (1966), 37, 2089
- [⁴⁰] C.V. SHANK and S.E. SCHWARZ, Appl. Phys. Lett. (1968), 13, 113
- [⁴¹] W. DIETEL, Phys. Lett. (1969), 29A, 268
- [⁴²] R.H. CORDOVER and P.A. BONCZYK, Phys. Rev. (1969), 188, 696
- [⁴³] T.O. CARROLL and G.J. WOLGA, Phys. Rev. Lett. (1968), 21, 670
- [⁴⁴] G.R. HANES and C.E. DAHLSTROM, Appl. Phys. Lett. (1969), 14, 362
T.W. HANSCH, M.D. LEVENSON, and A.L. SCHAWLOW, Phys. Rev. Lett. (1971) 26, 946.
M.S. SOREM and A.L. SCHAWLOW, Opt. Commun. (1972), 5, 148
- [⁴⁵] M. BROYER, F.W. DALBY, J. VIGUE and J.C. LEHMANN, to be published.
- [⁴⁶] J. DATCHARY and M. DUCLOY, Compt. Rend. (1972), 274B, 337
- [⁴⁷] The R contributions are no longer negligible in the case when the detection set-up resolves the spectral shape of the fluorescence lines : then we cannot perform the velocity average. However, R is spatially modulated with a wavelength of the order of half the laser wavelength. Since the area which is observed by the detection set-up has dimensions much larger than the wavelength, the second order contributions of R are not visible, due to their spatial modulation. At the fourth order, the successive applications of R and R^{*} give a contribution which is spatially modulated with a

wavelength of the order of the cavity length and then is detectable. As it may be seen in equation I-A-12, this contribution will be important close by the laser mirrors only : as a function of the distance from the mirror, this varies like $\exp(-2r/r_0)$

[⁴⁸] C. COHEN-TANNOUDJI, Ann. Phys. (Paris, 1962), 7, 423

[⁴⁹] Strictly speaking, the equivalence is fulfilled when the laser is free-running. As the laser pumping does not create modulations in the atomic levels, we set $p'=s=0$ in I-52-53. On the other hand, in the phase-locked operation, the laser pumping is equivalent to the pumping with an ordinary amplitude-modulated light source.

[⁵⁰] Interaction with the laser field and interaction with laser photons must be carefully distinguished. If the atom is in one of the laser levels, one interaction with the field creates optical coherence. A second interaction implies a photon absorption (or a stimulated emission) and, at the same time, the atom undergoes a transition between the two laser levels.

Figures Captions

- Figure 1 Diagram of the laser transition
- Figure 2 Velocity distribution of a laser level. The laser-off distribution is proportional to the Maxwell repartition function, $W_M(v)$. When the laser is turned on, a set of equidistant "BENNETT Holes" appears, the position of which is determined by $\bar{K}v = \omega_\mu - \omega$ (dashed curves). When Γ_{ab} is greater than $\Delta\omega$, the hole structure disappears and the atomic response is proportional to $W_M(v)$ (BLA limit, dotted line).
- Figure 3 Electric field amplitude of a phase-locked multimode laser as a function of time. The amplitude is modulated in short periodic pulses of width T_L . The dashed curve represents the decay of the optical coherence created by the t_0 -pulse.
- Figure 4 Diagram of the π -transitions when $J_a + J_b \leq 2$.
(α) $J=1 - J=0$ (β) $J=1 - J=1$ (γ) $J=3/2 - J=1/2$
- Figure 5 Diagram of the transitions induced by a σ -polarized laser beam between two $J=1$ levels.
- Figure 6 Variations of $R(\pm r)$ with position, close by the left-hand mirror (close by the right-hand mirror, the R values are reversed). The oscillating factor ($e^{\pm 2iKr}$) has been omitted. The dashed curve represents $2\gamma \cdot \exp(-r/r_0)$.

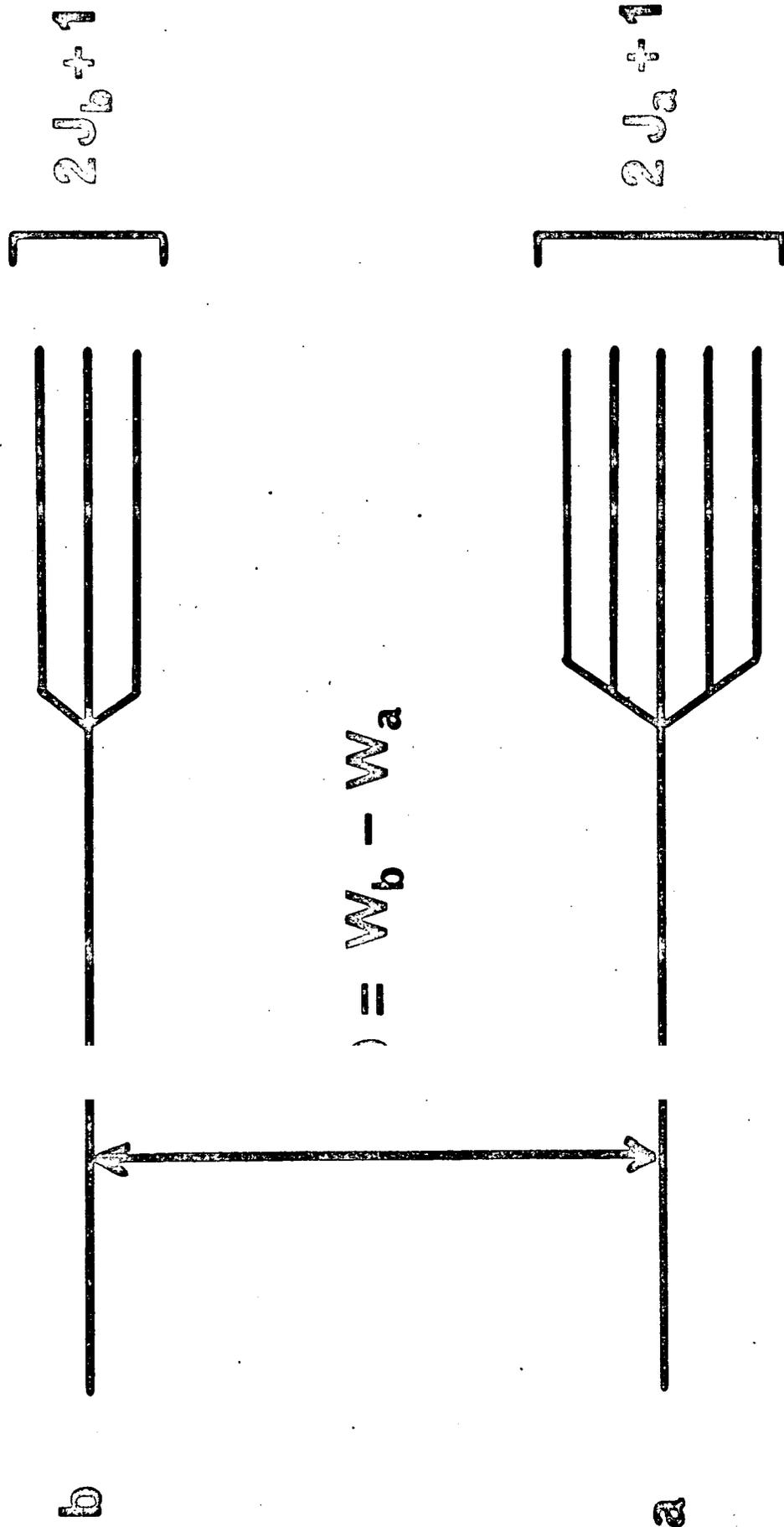


Figure 1.

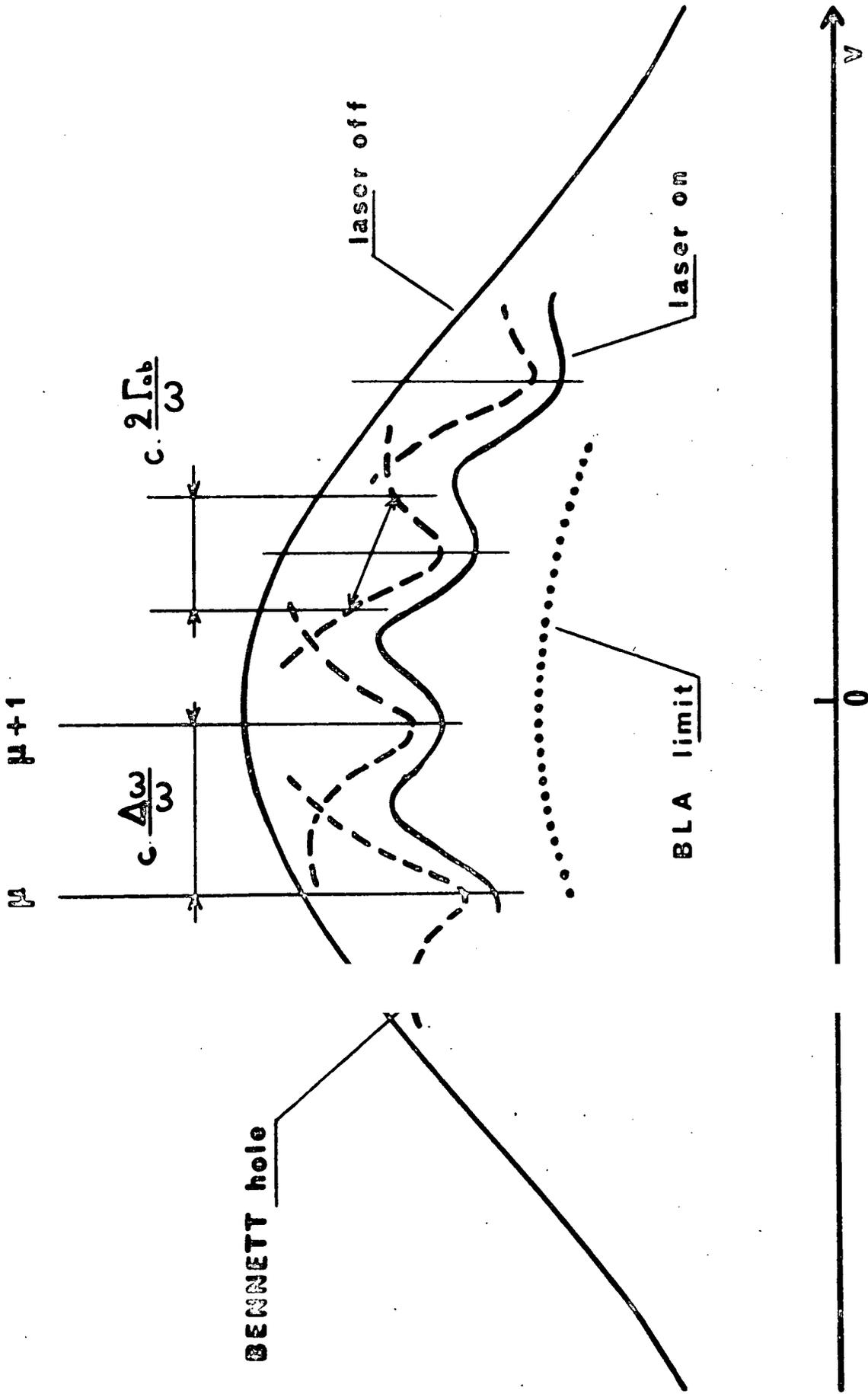


Figure 2

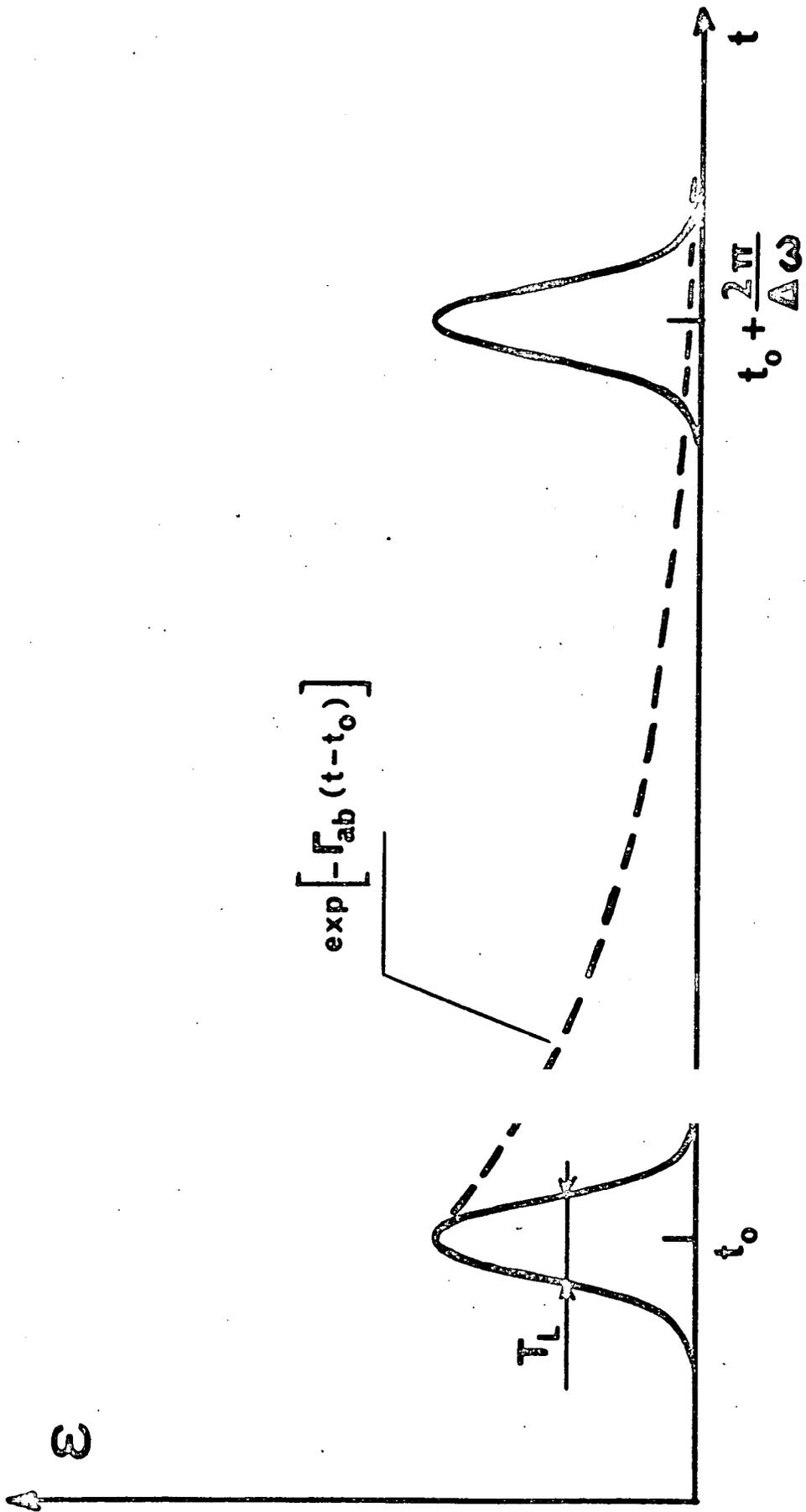


Figure 3

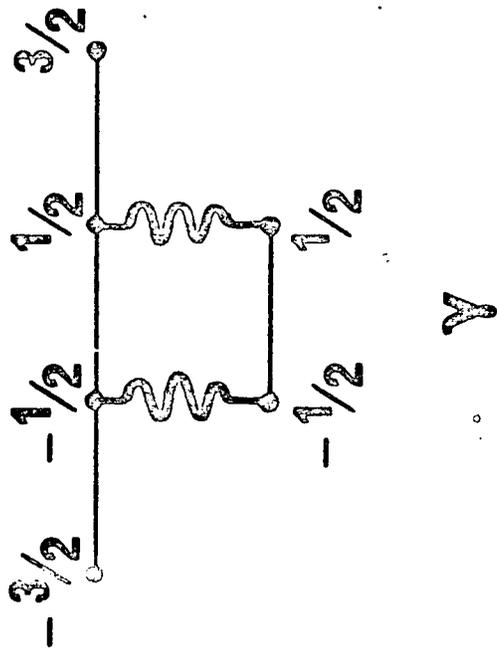
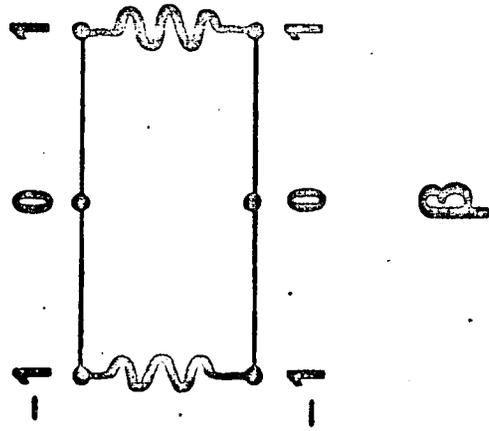
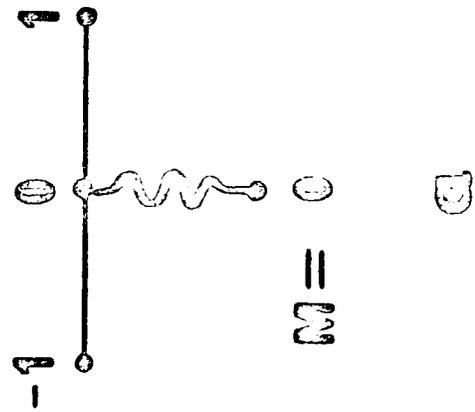


Figure 4

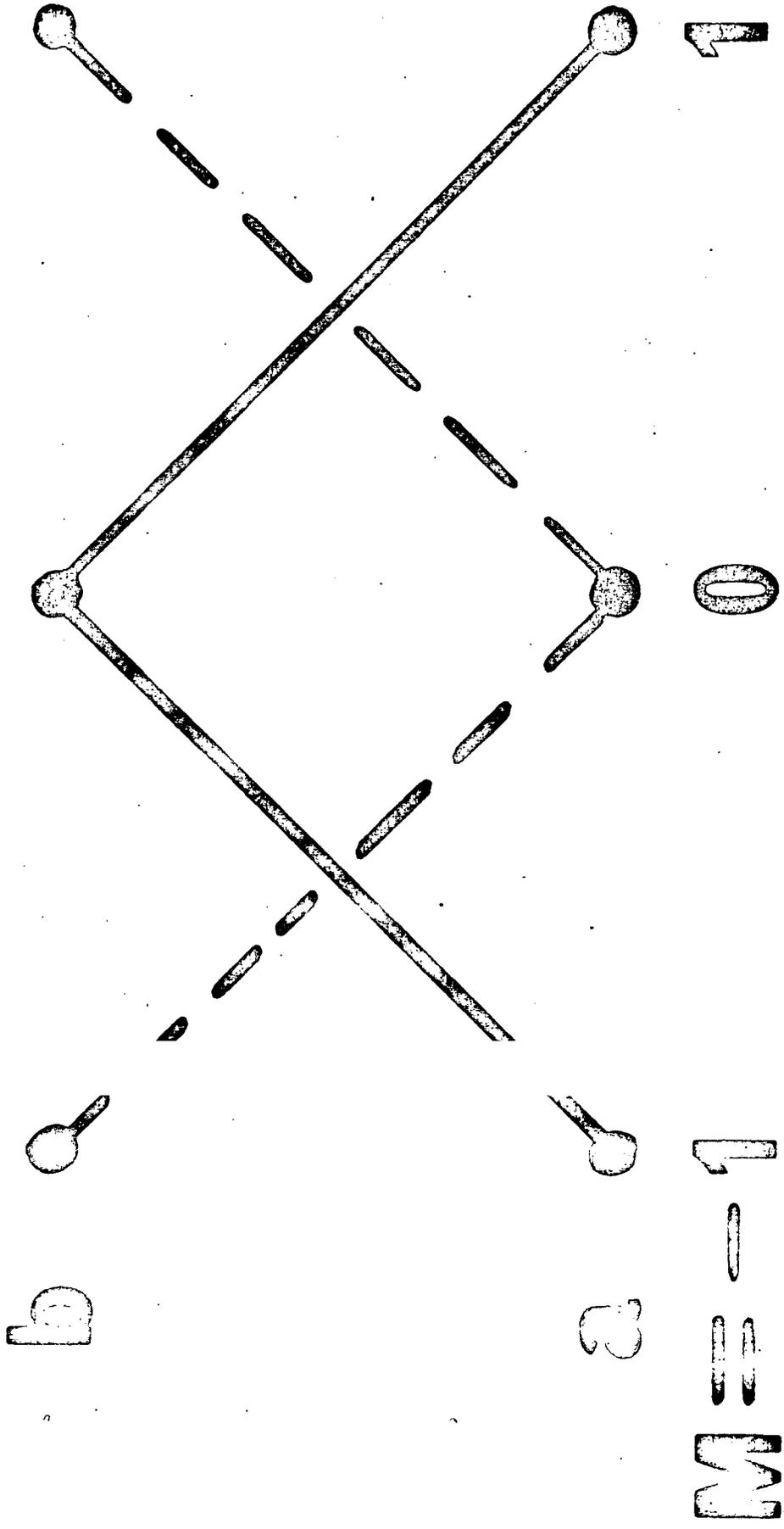


Figure 5

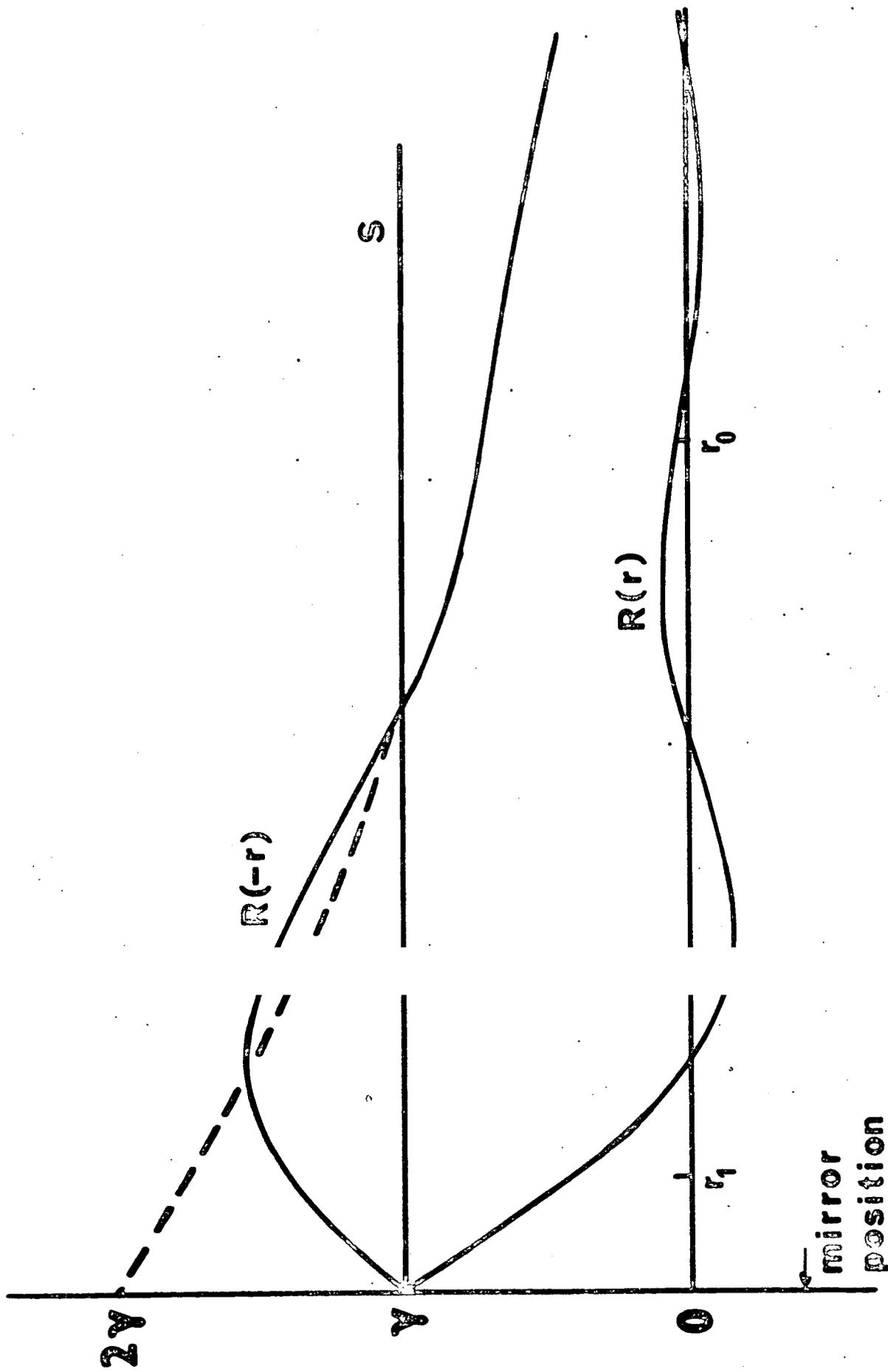


Figure 6

Article II

■ THEORIE NON-PERTURBATIVE DANS LE CAS ■
DE PETITS MOMENTS CINETIQUES

PLAN DE L'ARTICLE II

I - INTRODUCTION	p. 1
II - METHODE GENERALE DE RESOLUTION DES EQUATIONS D'EVOLUTION	p. 3
A) Champ magnétique nul	p. 4
B) Champ magnétique non nul	p. 5
III - TRANSITION $J_b = 1 - J_a = 0$	p.10
A) Effet Hanle du niveau b	p.11
B) Résonance de saturation des populations	p.13
IV - TRANSITION $J_b = 1 - J_a = 1$	p.13
A) Champ magnétique nul	p.14
B) Effets Hanle	p.14
C) Résonances de saturation	p.20
D) Cas particuliers	p.21
V - TRANSITION $J_b = 1 - J_a = 2$	p.24
A) Champ magnétique nul. Anisotropie des raies de fluorescence	p.24
B) Effets Hanle. Moment hexadécapolaire induit dans le niveau a	p.27
C) Résonances de saturation. Comportement anormal de la résonance observée sur la fluorescence $J_a=2 \rightarrow J_f=2$	p.36
D) Modèle à deux temps de relaxation	p.39
VI - CONCLUSION	p.43
APPENDICE : Notations pour la transition $J = 1 - J = 2$	p.46

NON LINEAR EFFECTS IN OPTICAL PUMPING OF ATOMS

BY A HIGH-INTENSITY MULTIMODE GAS LASER

II- EXACT THEORY FOR SMALL ANGULAR MOMENTA

Martial DUCLOY

Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole
Normale Supérieure, Associé au Centre National de la Recherche
Scientifique, 75231 PARIS CEDEX 05, France

Abstract :

In a previous paper, we have presented a general theory of the optical pumping of atoms by a polarized multimode laser beam, in the presence of a magnetic field. Equations of motion, valid at arbitrary laser intensities for the density matrix of the atomic system, have been obtained. In this paper, these equations are exactly solved for a linearly σ -polarized laser and levels having small angular momenta. More precisely, we consider laser transitions $J_b = I \rightarrow J_a = 0$, $J_b = I \rightarrow J_a = I$ and $J_b = I \rightarrow J_a = 2$. Two particular results are emphasized :

I°) For $J=I - J=0$ and $J=I - J=I$ transitions and for the $J=2$ level of a $J=I - J=2$ transition, the laser-induced Hanle effects keep a Lorentzian shape, independent from the laser intensity. For the $J=I - J=I$ transition, we show that the depolarizing relaxation processes play a leading part in the coupling induced by the laser between the transverse alignments of the two levels . On the other hand, the power-broadenings of the Hanle effects are shown to be similar. For the $J=I$ level of a $J=I - J=2$ transition, the Hanle effect shape presents a departure from the Lorentzian one, due to a coupling with the laser-

induced hexadecapole moment in the $J=2$ level.

2°) The populations of the levels exhibit a "zero field saturation resonance" which is due to the coupling with the Zeeman coherences. These resonances, which reproduce the Hanle effects of the transition, can be observed on the π -polarized fluorescence from the levels. In general, these resonances appear as a saturation effect, i.e. they reduce the laser-induced fluorescence of the levels in zero magnetic field. However, for the $J_b=1-J_a=2$ transition, the $J_a=2 \rightarrow J_f=2$ π fluorescence presents an anomalous behaviour: the saturation resonance increases the zero field laser-induced fluorescence. The theoretical study shows the prominent part played by the value of the $J_b=1$ level lifetime in the interpretation of this anomaly. Other results, such as the laser-induced depolarization of the fluorescence, are also obtained. All the theoretical predictions have been experimentally checked and will be presented in forthcoming papers.

I- INTRODUCTION

In a previous paper [1], which will be referred to as I in the following, we have presented a general theory of the optical pumping of atoms by a multimode gas laser. Let us remind the principal assumptions.

The laser is resonant for the b-a atomic transition (b upper level, a lower level). Every level has a Zeeman structure completely determined by its angular momentum, J_β , and its Landé factor, g_β ($\beta=a$ or b). The atomic levels are populated by a d.c. discharge which introduces a global population only. The atoms are submitted to a d.c magnetic field, H , parallel to the Oz axis. They are described by means of their density matrix, ρ , which is developed on an irreducible tensorial set

$$\rho^{\beta^0} = \sum_{k,Q} \rho^{\beta^0 k} \rho^{\beta^T(k) Q} \quad (\text{II-1})$$

The atomic relaxation is assumed to be isotropic : there is one relaxation rate per tensorial order, $\Gamma_\beta(k)$.

In order to avoid the usual perturbation theory, we have introduced in I, the so-called "Broad Line Approximation" (BLA). BLA is valid when the width of the "Bennett hole" [2] created by one laser mode in the velocity distribution of the excited atoms is comparable to (or broader than) the spacing between modes ; in these conditions, the atomic response does not depend on the velocity and the multimode laser irradiation is equivalent to a broad-line excitation. BLA leads to a set of equations coupling the velocity-averaged density matrix components, and valid at arbitrary intensities of the laser field. These equations depend on the electric field through an unique parameter, γ , which is proportional to the laser intensity and which

can be interpreted as a laser-induced transition probability (eq I-46).

In I, we have analysed the nonlinear effects which can be deduced from a perturbation development, for any values of the angular momenta, of the magnetic field and of the laser polarization. In this article, we present the exact calculations for a linear σ -polarization (that we shall take parallel to Ox) and for small J values ; more precisely, we completely calculate the nonlinear effects for the following transitions : 1-0, 1-1 and 1-2.

Moreover, condition I-68 ($\Gamma_\beta \ll \Delta\omega$) is assumed to be valid and we consider the case of weak magnetic fields only, when the density matrix modulations are off-resonance. Then, in the steady-state operation, equations I-50-51 are reduced to a set of equations coupling the time-independent components ($\beta = a$ or b) :

$$[\Gamma_\beta(k) + i Q \omega_\beta] \rho_{\beta Q}^k = \delta_{\beta,a} \theta(b,a,k) \rho_{\beta Q}^k + \beta \zeta_Q^k \quad (\text{II-2})$$

where

$$a \zeta_Q^k = -\gamma \sum_{k', Q', q} (-)^{k+k'} \frac{q G_{Q', Q}^{k', k}}{ab} [e_{-q} ab \zeta_{Q'}^{k'} + (-)^{k+k'+Q+1} e_q^* ab \zeta_{-Q'}^{k' *}] \quad (\text{II-3a})$$

$$b \zeta_Q^k = -\gamma \sum_{k', Q', q} \frac{q G_{Q', Q}^{k', k}}{ba} [e_{-q} ab \zeta_{Q'}^{k'} + (-)^{k+k'+Q+1} e_q^* ab \zeta_{-Q'}^{k' *}] \quad (\text{II-3b})$$

and

$$ab \zeta_{Q'}^{k'} = e_{Q'}^* \frac{n}{\sqrt{3}} \delta_{k', 1}$$

$$+ \sum_{k'', Q'', q'} e_{-q'}^* [\frac{q' G_{Q', Q''}^{k', k''}}{ba} \rho_{Q''}^{k''} + (-)^{k'+k''} \frac{q' G_{Q', Q''}^{k', k''}}{ab} \rho_{Q''}^{k''}] \quad (\text{II-4})$$

The geometrical coefficients, G and θ , are defined by I-19 and I-21. n is the laser-off populations inversion (I-24). ω_β is the β Zeeman splitting and e_q are the standard components of the laser polarization. Let us remember that :

1) ρ represents the laser-induced change of the density matrix (the laser-off populations have been eliminated).

2) ${}_{ab}^k \zeta_{Q'}$ appeared in the source-term of the equation of motion of the optical coherence, ${}_{ab}^k \rho_{Q'}$ (see I-28). ${}_{ab}^k \zeta_{Q'}$ is proportional to the amplitude of the optical k' - multipole moment created by the laser between a and b .

When the laser modes are free-running, equations II-2-4 are valid whatever the magnetic field may be. On the other hand, when the modes are phase-locked and when the Landé factors are equal, the results obtained in this paper may be easily extended to the strong fields case, with the help of equations I-83-84. By solving equations II-2-3-4, we shall study the quantities which can be obtained in fluorescence measurements, in particular :

- 1) The density matrix components in zero magnetic field. They appear in the anisotropy degree of the zero field fluorescence (the exact definition of this anisotropy is given in section E of ref. [15], in particular equation 68)
- 2) The transverse alignments, ρ_2^2 . The variations of their real part with the magnetic field give the Hanle effect.
- 3) The longitudinal components (i.e the populations of the sublevels) which are observable on the π -polarized fluorescence.

II- GENERAL WAY OF SOLVING THE EQUATIONS OF MOTION

In order to solve the equations of motion, it is important to point out that the density matrix components do not represent a set of inde-

pendent variables. For instance, linear relations exist between the longitudinal components, $\rho_{\beta 0}^k$. The most simple relation may be deduced from the

fact that $\rho_{b 0}^0 \sqrt{2J_b+1} = -\rho_{a 0}^0 \sqrt{2J_a+1}$. This implies

$$(\Gamma_b(0) - \gamma_{ba}) \rho_{b 0}^0 \sqrt{2J_b+1} + \Gamma_a(0) \rho_{a 0}^0 \sqrt{2J_a+1} = 0 \quad (\text{II-5})$$

Since the laser-induced population change of the β level is $\rho_{\beta 0}^0 \sqrt{2J_{\beta}+1}$, II-5 expresses the conservation of the total population inside the a and b levels : all the atoms leaving one of the two levels due to the laser interaction must go into the other level. The γ_{ba} term takes into account the excitation rate of the a level by spontaneous emission from b. The other relations between the longitudinal components could be deduced from a detailed analysis of the laser-induced exchange rate of the sublevels populations, for each set of Zeeman sublevels coupled by the laser.

We shall see that, contrary to $\rho_{\beta Q}^k$, the $\zeta_{ab}^{k'}$ components represent a set of independent variables (i.e they are not coupled by simple linear relations similar to equation II-5). That is the reason why these components have been kept in II-2-3 : they will be an important intermediate step in the search of the solution.

A) Zero magnetic field

Taking the Oz axis along the laser polarization, we can set $Q=Q'=Q''=0$ in II-2-4. On the other hand, as it has been shown in I, k' must be odd, and k and k'' must be even. If we call σ the density matrix such as expressed in this quantization axis, equations II-3-4 become

$$\Gamma_{\beta}(k) \rho_{\beta 0}^k = \delta_{\beta,a} \theta(b,a,k) \rho_{b 0}^k + \zeta_{\beta 0}^k \quad (\text{II-6})$$

$$a \zeta_0^k = 2\gamma \sum_{k'} \frac{O_{Gk'k}}{ab_{00}} ab \zeta_0^{k'} \quad (\text{II-7a})$$

$$b \zeta_0^k = -2\gamma \sum_{k'} \frac{O_{Gk'k}}{ba_{00}} ab \zeta_0^{k'} \quad (\text{II-7b})$$

$$\text{and } ab \zeta_0^{k'} = \frac{n}{\sqrt{3}} \delta_{k',1} + \sum_{k''} \left(\frac{O_{Gk'k''}}{ba_{00}} b \sigma_0^{k''} - \frac{O_{Gk'k''}}{ab_{00}} a \sigma_0^{k''} \right) \quad (\text{II-8})$$

Eliminating β^σ between equations II-6-7-8, we easily obtain :

$$\sum_{\ell'} M_0^{k'\ell'} ab \zeta_0^{\ell'} = \frac{n}{\sqrt{3}} \delta_{k',1} \quad (\text{II-9})$$

where

$$M_0^{k'\ell'} = \delta_{k',\ell'} + 2\gamma \sum_k \left[\frac{\frac{O_{Gk'k}}{ba_{00}} \quad \frac{O_{G\ell'k}}{ba_{00}}}{\Gamma_b(k)} + \frac{\frac{O_{Gk'k}}{ab_{00}} \quad \frac{O_{G\ell'k}}{ab_{00}}}{\Gamma_a(k)} - \theta(b,a,k) \frac{\frac{O_{Gk'k}}{ab_{00}} \quad \frac{O_{G\ell'k}}{ba_{00}}}{\Gamma_b(k) \Gamma_a(k)} \right]$$

(II-10)

The solution is obtained by inverting matrix M_0 [3]. As it has been mentioned in I, for $J=1-J=0$ and $J=1-J=1$ transitions, k' can be one only and M_0 has an unique matrix element, M_0^{11} . In these cases, all the density matrix components are proportional to $\gamma ab \zeta_0^1$ and show the same variations with the laser intensity.

For a $J=1-J=2$ transition $ab \zeta_0^3$ exists in addition to $ab \zeta_0^1$, and M_0 is a 2×2 matrix. The various density matrix components do not undergo identical variations with the laser intensity. To come back to our ordinary framework (laser polarized along the Ox axis), we must perform the rotation which brings Oz on Ox . The transformation formulae are [4]

$$\rho_Q^k(H=0) = (-)^{\frac{k+Q}{2}} \frac{[(k+Q)! (k-Q)!]^{1/2}}{2^k \left(\frac{k+Q}{2}\right)! \left(\frac{k-Q}{2}\right)!} \sigma_0^k \quad (\text{II-11})$$

B) Non zero magnetic field

The standard components of a σ_x polarization are given by :

$$e_0 = 0 \quad \text{and} \quad e_{\pm 1} = \mp \frac{1}{\sqrt{2}} \quad (\text{II-12})$$

As it has been shown in I, due to the symmetry relations of the G coefficients and to II-12, k, k'', Q and Q'' must be even in II-2-3-4. On the other hand, for the optical coherences, Q' must be odd and k' may take all the integer values between 1 and $J_a + J_b$. Then, it is easy to show the following symmetry relation

$$ab\zeta_{-Q'}^{k'\star} = (-)^{k'} ab\zeta_{Q'}^{k'} \quad (\text{II-13})$$

With the help of II-12-13, equations II-3-4 become

$$a\zeta_Q^k = \gamma\sqrt{2} \sum_{k'} (-)^{k'} \left[\begin{matrix} -1_{G_{Q+1,Q}}^{k'k} & ab\zeta_{Q+1}^{k'} \\ -1_{G_{Q-1,Q}}^{k'k} & ab\zeta_{Q-1}^{k'} \end{matrix} \right] \quad (\text{II-14})$$

$$b\zeta_Q^k = \gamma\sqrt{2} \sum_{k'} \left[\begin{matrix} -1_{G_{Q+1,Q}}^{k'k} & ab\zeta_{Q+1}^{k'} \\ -1_{G_{Q-1,Q}}^{k'k} & ab\zeta_{Q-1}^{k'} \end{matrix} \right] \quad (\text{II-15})$$

and

$$ab\zeta_{Q'}^{k'} = \frac{n}{\sqrt{6}} \delta_{k',1} (\delta_{Q',-1} - \delta_{Q',1})$$

$$+ \frac{(-)^{k'}}{\sqrt{2}} \sum_{k''} \left[\begin{matrix} 1_{G_{Q',Q'+1}}^{k'k''} & a^{\rho_{Q'+1}}{}^{k''} \\ -1_{G_{Q',Q'-1}}^{k'k''} & a^{\rho_{Q'-1}}{}^{k''} \end{matrix} \right]$$

$$+ \frac{1}{\sqrt{2}} \sum_{k''} \left[\begin{matrix} 1_{G_{Q',Q'+1}}^{k'k''} & b^{\rho_{Q'+1}}{}^{k''} \\ -1_{G_{Q',Q'-1}}^{k'k''} & b^{\rho_{Q'-1}}{}^{k''} \end{matrix} \right] \quad (\text{II-16})$$

To solve equations II-2 and II-14-16, we shall eliminate first the longitudinal components, which do not precess in the magnetic field, in order to obtain a set of equations only coupling the transverse components which describe the evolution of the Zeeman coherence due to the magnetic field.

1) Elimination of the longitudinal components

Using the symmetry relations of coefficients G and introducing a quantity proportional to the real part of $ab\zeta_1^{k'}$

$$X^{k'} = \frac{(-)^{k'+1}}{\sqrt{2}} (ab\zeta_1^{k'} + ab\zeta_1^{k'\star}) \quad (\text{II-17})$$

equations II-2 and II-14-16 become (for $Q=0$ and $Q'=1$)

$$\Gamma_a(k) \cdot a \rho_0^k = 2\gamma \sum_{k'} [(-)^{k'} \frac{1_{G^{k'k}}}{ab^{-10}} + \frac{\theta(b,a,k)}{\Gamma_b(k)} \frac{1_{G^{k'k}}}{ba^{-10}}] X^{k'} \quad (\text{II-18a})$$

$$\Gamma_b(k) \cdot b \rho_0^k = 2\gamma \sum_{k'} \frac{1_{G^{k'k}}}{ba^{-10}} X^{k'} \quad (\text{II-18b})$$

and

$$X^{k'} = -\frac{n}{\sqrt{3}} \delta_{k',1} - \sum_{k''} \left[\frac{1_{G^{k'k''}}}{ba^{-10}} b \rho_0^{k''} + (-)^{k'} \frac{1_{G^{k'k''}}}{ab^{-10}} a \rho_0^{k''} \right]$$

$$- \sum_{k''} [(-)^{k'} \frac{1_{G^{k'k''}}}{ba^{12}} b R^{k''} + \frac{1_{G^{k'k''}}}{ab^{12}} a R^{k''}] \quad (\text{II-19})$$

where R_Q^k is the real part of ρ_Q^k

$$\beta R_Q^k = \frac{\beta \rho_Q^k + \beta \rho_Q^{k*}}{2} \quad (\text{II-20})$$

Eliminating $\beta \rho_0^k$ between equations II-18-19, we obtain

$$\sum_{\ell'} M^{k'\ell'} X^{\ell'} = -\frac{n}{\sqrt{3}} \delta_{k',1} - \sum_{k''} [(-)^{k'} \frac{1_{G^{k'k''}}}{ba^{12}} b R^{k''} + \frac{1_{G^{k'k''}}}{ab^{12}} a R^{k''}] \quad (\text{II-21})$$

where

$$M^{k'\ell'} = \delta_{k'\ell'} + 2\gamma \sum_k \left[\frac{1_{G^{k'k}}}{ba^{-10}} \frac{1_{G^{\ell'k}}}{ba^{-10}} + (-)^{k'+\ell'} \frac{1_{G^{k'k}}}{ab^{-10}} \frac{1_{G^{\ell'k}}}{ab^{-10}} + (-)^{k'} \theta(b,a,k) \frac{1_{G^{k'k}}}{\Gamma_a(k)} \frac{1_{G^{\ell'k}}}{\Gamma_b(k)} \right] \quad (\text{II-22})$$

M is a square matrix of dimension $J_a + J_b$. As M_0 , M is symmetrical when the $b \rightarrow a$ spontaneous emission is negligible. We suppose that we can calculate its inverse matrix, and we call it μ/Δ , where Δ is the determinant of M . Then, the solution of II-21 is :

$$X^{k'} = -\frac{n}{\sqrt{3}} \frac{\mu^{k'1}}{\Delta} - \frac{1}{\Delta} \sum_{\ell',k''} \mu^{k'\ell'} [(-)^{\ell'} \frac{1_{G^{\ell'k''}}}{ba^{12}} b R^{k''} + \frac{1_{G^{\ell'k''}}}{ab^{12}} a R^{k''}] \quad (\text{II-23})$$

Δ and $\mu^{k'k''}$, taken as functions of γ , are polynomials of degrees respectively equal to $J_a + J_b$ and $J_a + J_b - 1$.

2) Equations of motion of the transverse components. Hanle effects.

Using II-2-14-15-16 and the relation

$$(-)^{k'} \sqrt{2} \zeta_{ab}^{k'} + X^{k'} = \sum_{k''} [(-)^{k'} \frac{1}{b a} G^{k'k''} (b^{\rho 2} - b^{R 2}) + \frac{1}{a b} G^{k'k''} (a^{\rho 2} - a^{R 2})] \quad (\text{II-24})$$

We obtain the following equations of motion for $b^{\rho 2 k}$

$$\begin{aligned} (\Gamma_b(k) + 2i\omega_b) b^{\rho 2 k} = & \gamma \sum_{k'', Q'' \geq 2} (b a^{h_{2Q''} k k''} a^{\rho Q'' k''} - b^{h_{2Q''} k k''} b^{\rho Q'' k''}) \\ & + \gamma \sum_{k'} (-)^{k'} \frac{1}{b a} G^{k'k''} \{ X^{k'} + \sum_{k''} [(-)^{k'} \frac{1}{b a} G^{k'k''} b^{R 2 k''} + \frac{1}{a b} G^{k'k''} a^{R 2 k''}] \} \end{aligned} \quad (\text{II-25})$$

To simplify the formulation, we have reintroduced the geometrical coefficients $h_{QQ''}^{kk''}$, which are defined by equations I-62-63. In the right-hand side of II-25, two different contributions appear

- 1) The first contribution corresponds to the direct laser-induced coupling between the transverse components. This coupling is proportional to γ .
- 2) The second term corresponds to an indirect coupling between the $Q=2$ transverse components through the longitudinal quantities. Since these quantities are real, this coupling involves the real part of the transverse components only. The second term also includes the source-term, proportional to the laser-off populations inversion, n .

For the a level, the coupling by spontaneous emission from b to a must be added to these two contributions.

For $Q \geq 4$, $b^{\rho Q k}$ is not directly coupled to the longitudinal components and the second term of II-25 does not appear. The equations of motion are :

$$(\Gamma_b(k) + iQ\omega_b) b_{Qk}^k = \gamma \sum_{k'', Q''} (b_{a''Q''}^{hkk''} a_{Q''}^{k''} - b_{b''Q''}^{hkk''} b_{Q''}^{k''}) \quad (\text{II-26})$$

(and similar equations for level a)

To obtain the expression of the transverse components, equations II-25 and II-26 must be solved simultaneously. For the $J=1 - J=0$ and $J=1 - J=1$ transitions, the transverse alignments are the only transverse components. In this case, equation II-26 does not exist, and equations II-25 are reduced to one (1-0) or two equations (1-1). We shall see that an analytic solution may be obtained. For the $J_b=1 - J_a=2$ transition, there are three equations II-25 ($a_{22}^{\rho^2}$, $a_{22}^{\rho^4}$ and $b_{22}^{\rho^2}$) and one equation II-26 ($a_{44}^{\rho^4}$). The only way to solve these equations, for all the magnetic field values, is by means of a computer calculation.

The variations of the transverse components with the magnetic field give the well-known Hanle effects. In the following sections, we shall use the notation (for $Q \neq 0$) :

$$\beta R_Q^k(H) = \beta R_Q^k(0) \beta L_Q^k(H) \quad (\text{II-27})$$

In zero magnetic field, $\beta L_Q^k(0)$ is equal to one, and, in strong field, $\beta L_Q^k(\infty)$ vanishes. $\beta L_Q^k(H)$ represents the "normalized Hanle effect". On the other hand, since $R_Q^k(0)$ is defined in zero field, we may calculate it by means of equations II-6 to II-11.

3) "Saturation resonances" of the sublevels populations

When the transverse components have been calculated, the longitudinal ones may be expressed by means of II-18 and II-23. The longitudinal components, i.e the populations of the atomic sublevels, exhibit variations in the zero magnetic field region, which are proportional to $\beta R_2^k(H)$. These variations, which appear from the fourth order in the laser field only, will be called "saturation resonances". Let us point out that it is not necessary to

solve II-25 and II-26 to obtain the relative amplitude of the saturation resonance. As it can be seen on equations II-18 and II-23, it is sufficient to determine the μ matrix and to calculate the zero field components, $\beta R_2^k(0)$. For instance, the amplitude of the saturation resonance on level b is given by

$$\frac{\rho_0^k(\infty) - \rho_0^k(0)}{\rho_0^k(\infty)} = - \frac{\sqrt{3} \sum_{k', l', k''} \frac{1}{b a^{G-10}} \mu^{k'l'} [(-)^{l'} \frac{1}{b a^{G-12}} R_2^{k''}(0) + \frac{1}{a b^{G-12}} R_2^{k''}(0)]}{n \sum_{k'} \frac{1}{b a^{G-10}} \mu^{k'l}}$$

(II-28)

C) Conclusion

In this section, we have presented the way of solving the equations of motion. In the following sections, this will be applied to $J=1 - J=0$, $J=1 - J=1$ and $J=1 - J=2$ transitions. For each case, the geometrical coefficients $\frac{q_{\alpha}^{kk'}}{\beta_{\alpha}^{QQ'}}$ and $\theta(b, a, k)$, (equations I-19 and I-21) will be calculated using the numerical values of the 3-j and 6-j symbols which may be found in the tables [5][6]. Numerical applications of the theory to the laser experiments in neon will be performed with the help of the experimental values of the relaxation times of the neon levels [7][8][12].

III- TRANSITION $J_b = I \rightarrow J_a = 0$

For a 1-0 transition, the optical coherence is reduced to the electric dipole moment ($k'=1$). Then, as it can be seen on equations II-18, all the longitudinal components of the density matrix are proportional, independently of the laser intensity and of the magnetic field :

$$-\Gamma_a^*(0) \rho_a^0 = \sqrt{3} \Gamma_b(0) \rho_b^0 = \sqrt{6} \Gamma_b(2) \rho_b^2 = \frac{2\gamma}{\sqrt{3}} X^1 \quad (\text{II-29})$$

where

$$\Gamma_a^*(0) = \Gamma_a(0) \left[1 - \frac{\gamma_{ba}}{\Gamma_b(0)} \right]^{-1} \quad (\text{II-30})$$

As it has been pointed out in section II, the relation between ρ_b^0 and ρ_a^0 expresses the conservation of the total population during a laser-induced transition between levels a and b. On the other hand, the proportionality between the population and the alignment of b comes from the fact that the $m_b=1$ and $m_b=-1$ sublevels are equally excited by the laser, whilst the $m_b=0$ sublevel is populated by the depolarizing relaxation processes only. For instance, if these processes do not exist ($\Gamma_b(0) = \Gamma_b(2)$), relation $\rho_b^0 = \sqrt{2} \rho_b^2$ may be easily obtained from the fact that there is no laser-induced change of the $m=0$ population.

Matrix M (eq II-22) is reduced to one element :

$$M^{11} = 1 + \eta \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)} \quad (\text{II-31})$$

where we have introduced a dimension-less parameter

$$\eta = \frac{1}{3} + \frac{2\Gamma_b(2)}{3\Gamma_b(0)} + \frac{2\Gamma_b(2)}{\Gamma_a^*(0)} \quad (\text{II-32})$$

X^1 is given by (equation II-21)

$$M^{11} X^1 = - \frac{n \rho_b R^2}{\sqrt{3}} \quad (\text{II-33})$$

A) Hanle effect of the b level

The equation of motion of the transverse alignment is given by (equ. II-25 and 33)

$$(\Gamma_b(2) + 2i\omega_b) \rho_b^2 = - \frac{\gamma}{3} \rho_b^2 + \frac{\gamma}{3 + \eta \frac{\gamma}{\Gamma_b(2)}} \left(n + \eta \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)} \rho_b R^2 \right) \quad (\text{II-34})$$

ρ_2^2 is calculated with the help of equation II-34 and its complex conjugate

$$\rho_2^2(H) = \frac{n\gamma}{3 + n \frac{\gamma}{\Gamma_b(2)}} \times \frac{\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{3} - 2i\omega_b}{[\gamma_b^I(2)]^2 + 4\omega_b^2} \quad (\text{II-35})$$

where

$$\gamma_b^I(2) = \Gamma_b(2) \left\{ \frac{\left[1 + \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)}\right] \left[1 + (n+1) \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)}\right]}{1 + n \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)}} \right\}^{1/2} \quad (\text{II-36})$$

The Hanle effect, which is described by the variations of ρ_2^2 with ω_b , always keeps a Lorentzian shape, independently of the laser intensity. This has been experimentally verified very well [9]. The variations of its width with the pumping rate, γ , are shown on figure 1, for $n = 4.75$ and $\Gamma_b(2) = 11$ MHz.

For weak laser intensities, the power-broadening, which is equal to $\gamma/3$ (first term in the right-hand side of II-34), is proportional to the laser-induced transition probability. This corresponds to the fourth order contribution in a perturbation development (see equation I-77). For strong laser intensities, the power-broadening becomes lower than $\gamma/3$. Since ρ_2^2 is equal to $(\rho_2^2 + \rho_{-2}^2)/2$, the ρ_2^2 term in equation II-34 implies a restitution of a part of the Zeeman coherence. This restitution through the longitudinal components appears from the sixth order in the laser field and involves a diminution of the alignment relaxation rate compared with the fourth order relaxation rate.

The ρ_2^2 term of II-34 also implies a coupling between ρ_2^2 and ρ_{-2}^2 . This laser-induced coupling of ρ_2^2 with the component precessing in the opposite direction changes the phase of the Zeeman coherence, and shifts the frequency of evolution. In the ordinary magnetic resonance, this kind of coupling induces a resonance shift (Bloch-Siegert effect [10]). Here, since ρ_2^2 and ρ_{-2}^2 are both resonant in zero magnetic field, the resonance is not displaced. But the phase shift changes the relative amplitude of the real

and imaginary parts of the coherence. In the ordinary Hanle effect, the absorption curve has the same amplitude as the dispersion curve. Here, their ratio is equal to

$$\frac{\Gamma_b(2) + \gamma/3}{\gamma_b^I(2)} \quad (\text{II-37})$$

It becomes higher than one from the sixth order in the laser electric field.

B) Saturation resonance of the populations

The sublevels populations are proportional to X^1 (II-29).

Using II-33 and 35, we obtain :

$$X^1 = - \frac{n}{M^{11}\sqrt{3}} \{ 1 - \mathcal{F} {}_b L_2^2(H) \} \quad (\text{II-38})$$

where

$$\mathcal{F} = \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2) + (\eta+1)\gamma} \quad (\text{II-39})$$

and ${}_b L_2^2$ is the normalized Hanle effect :

$${}_b L_2^2(H) = \left\{ 1 + \left[\frac{-2\omega_b}{\gamma_b^I(2)} \right]^2 \right\}^{-1} \quad (\text{II-40})$$

As it has been experimentally observed [9] , the populations exhibit a resonance which has exactly the same shape as the Hanle effect. The relative amplitude of this resonance, \mathcal{F} , is a homographic function of γ [11] . At high laser intensities, \mathcal{F} is equal to $(\eta+1)^{-1}$ (0.17 in the conditions of figure 1).

IV- TRANSITION $J_b = I \rightarrow J_a = I$

In this section, we shall use the following quantities which have the dimension of a time :

$$\tau(0) = \frac{1}{\Gamma_b(0)} + \frac{1}{\Gamma_a(0)} - \frac{Y_{ba}}{\Gamma_a(0)\Gamma_b(0)} \quad (\text{II-41})$$

and

$$\tau_1^1 = \frac{1}{\Gamma_b(2)} + \frac{1}{\Gamma_a(2)} + \frac{Y_{ba}}{2\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \quad (\text{II-42a})$$

$$\tau_2^2 = \frac{1}{\Gamma_b(2)} + \frac{1}{\Gamma_a(2)} - \frac{Y_{ba}}{2\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \quad (\text{II-42b})$$

$$\tau_1^2 = \frac{1}{\Gamma_b(2)} - \frac{1}{\Gamma_a(2)} + \frac{Y_{ba}}{2\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \quad (\text{II-42c})$$

$$\tau_2^1 = \frac{1}{\Gamma_b(2)} - \frac{1}{\Gamma_a(2)} - \frac{Y_{ba}}{2\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \quad (\text{II-42d})$$

These quantities will appear in the matrix elements of M_0 and M .

A) Zero magnetic field

In zero field, the laser creates an optical dipole moment only ($k'=1$). As it has been shown in section II-A from equations II-6 to II-11, all the density matrix components are proportional to $\gamma_{ab}\zeta_0^1$:

$$\Gamma_b(0) \rho_{b0}^0 = -2\sqrt{2} \Gamma_b(2) \rho_{b0}^2 = \frac{4\Gamma_b(2)}{\sqrt{3}} \rho_{\pm 2}^2 = -\frac{2nY}{3M_0^{11}\sqrt{3}}$$

(II-43a)

$$\Gamma_a^*(k) \rho_{aQ}^k = -\Gamma_b(k) \rho_{bQ}^k \quad (\text{II-43b})$$

where :

$$M_0^{11} = 1 + \frac{Y}{g} (2\tau(0) + \tau_1^1) \quad (\text{II-44})$$

$\Gamma_a^*(0)$ is given by II-30 and $\Gamma_a^*(2)$ by

$$\Gamma_a^*(2) = \Gamma_a(2) \left[1 + \frac{Y_{ba}}{2\Gamma_b(2)} \right]^{-1} \quad (\text{II-45})$$

B) Hanle effects

When the magnetic field is different from zero, the laser may create, in addition to the optical dipole moment, an optical quadrupole

moment ($k' = 2$), which is connected to the apparition, for high laser intensities, of quantity X^2 (II-17). The M matrix (II-22) has four components :

$$M = \begin{pmatrix} 1 + \gamma \left(\frac{2\tau(0)}{9} + \frac{\tau_1^1}{36} \right) & - \frac{\gamma\tau_1^2}{12} \\ - \frac{\gamma\tau_2^1}{12} & 1 + \gamma \frac{\tau_2^2}{4} \end{pmatrix} \quad (\text{II-46})$$

and its determinant is given by

$$\Delta = 1 + \gamma \left[\frac{2\tau(0)}{9} + \frac{\tau_1^1}{36} + \frac{\tau_2^2}{4} \right] + \frac{\gamma^2}{18} \left[\tau(0)\tau_2^2 + \frac{1}{2\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right] \quad (\text{II-47})$$

The inversion of M is obvious and we straightforwardly obtain for $X^{k'}$

(equation II-23) :

$$X^1 = - \frac{1}{2\Delta\sqrt{3}} \left[\left(1 + \gamma \frac{\tau_2^2}{4} \right) (2n + b^2 R_2^2 - a^2 R_2^2) + \frac{\gamma\tau_1^2}{12} (b^2 R_2^2 + a^2 R_2^2) \right] \quad (\text{II-48a})$$

$$X^2 = - \frac{1}{2\Delta\sqrt{3}} \left[- \frac{\gamma\tau_2^1}{12} (2n + b^2 R_2^2 - a^2 R_2^2) + \left(1 + \gamma \frac{2\tau(0)}{9} + \gamma \frac{\tau_1^1}{36} \right) (b^2 R_2^2 + a^2 R_2^2) \right] \quad (\text{II-48b})$$

In zero magnetic field, βR_2^2 is equal to $\beta \rho_2^2$ and is given by equations II-43.

In this case, eliminating βR_2^2 between II-43 and II-48b, we may verify that

X^2 vanishes, independently of the laser intensity. On the other hand, in

strong field, βR_2^2 vanishes and X^2 is proportional to τ_2^1 . The optical

quadrupole moment disappears when $\tau_2^1 = 0$, i.e. when

$$\Gamma_b(2) = \Gamma_a^*(2) \quad (\text{II-49})$$

This particular case will be considered in a detailed way later on (section IV-D)

The equations of motion of the transverse alignments are given by (equations

II-25)

$$(\Gamma_a(2) + 2i\omega_a) a \rho_2^2 = - \frac{\gamma_{ba}}{2} b \rho_2^2 - \frac{\gamma}{6} a \rho_2^2 + \frac{\gamma}{6} a R_2^2 + \frac{\gamma}{2\sqrt{3}} (-X^1 + X^2) \quad (\text{II-50a})$$

$$(\Gamma_b(2) + 2i\omega_b) b \rho_2^2 = - \frac{\gamma}{6} b \rho_2^2 + \frac{\gamma}{6} b R_2^2 + \frac{\gamma}{2\sqrt{3}} (X^1 + X^2) \quad (\text{II-50b})$$

As it had been shown in the previous article, there is no direct laser-induced

coupling between the transverse alignments ($h_{ba}^{22} = 0$, see equation I-78). Eliminating the imaginary parts of ρ_2^2 between equations II-50 and their complex conjugate, and using relations II-48, we obtain two coupled equations for R_b^2 and R_a^2 .

$$\left[\Gamma_a(2) + \frac{\gamma}{6} \chi_{aa} + \frac{4\omega_a^2}{\Gamma_a(2) + \frac{\gamma}{6}} \right] R_a^2 + \left\{ \frac{\gamma}{6} \chi_{ba} + \frac{\gamma_{ba}}{2} \left[1 - \frac{4\omega_a\omega_b}{(\Gamma_a(2) + \frac{\gamma}{6})(\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{6})} \right] \right\} R_b^2 = \frac{n\gamma}{6\Delta} \left[1 + \gamma \left(\frac{\tau_2^2}{4} - \frac{\tau_2^1}{12} \right) \right] \quad (\text{II-51a})$$

$$\frac{\gamma}{6} \chi_{aba} R_a^2 + \left[\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{6} \chi_{bb} + \frac{4\omega_b^2}{\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{6}} \right] R_b^2 = -\frac{n\gamma}{6\Delta} \left[1 + \gamma \left(\frac{\tau_2^2}{4} + \frac{\tau_2^1}{12} \right) \right] \quad (\text{II-51b})$$

where

$$\chi_{aa} = \frac{1}{\Delta} \left\{ 1 + \frac{\gamma}{9} \left[\tau(0) + \frac{1}{2\Gamma_b(2)} + \frac{2}{\Gamma_a(2)} - \frac{\gamma_{ba}}{2\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right] \right\} \quad (\text{II-52a})$$

$$\chi_{ab} = \frac{\gamma}{9\Delta} \left[\tau(0) - \frac{1}{\Gamma_b(2)} - \frac{1}{\Gamma_a(2)} + \frac{\gamma_{ba}}{\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right] \quad (\text{II-52b})$$

$$\chi_{ba} = \frac{\gamma}{9\Delta} \left[\tau(0) - \frac{1}{\Gamma_b(2)} - \frac{1}{\Gamma_a(2)} + \frac{\gamma_{ba}}{4\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right] \quad (\text{II-52c})$$

χ_{bb} is obtained from χ_{aa} by permuting a and b.

In equations II-51, there are two different couplings between the alignments

- a) The coupling induced by the b→a spontaneous emission (γ_{ba} term in II-51a)
- b) The laser-induced coupling ($\gamma\chi_{ba}$ and $\gamma\chi_{ab}$ terms). Since $\Gamma_b(2)$ is larger than $\Gamma_b(0)$, equations II-52 show that generally χ_{ba} and χ_{ab} are positive. The only way for χ_{ab} and χ_{ba} to be cancelled out is that

$$\Gamma_b(2) = \Gamma_b(0) = \gamma_\beta \quad \text{and} \quad \gamma_{ba} \ll \gamma_\beta \quad (\text{II-53})$$

This particular case of a zero coupling will be studied later. The existence of a coupling can be interpreted with the help of the diagram of the transition (figure 2).

1) When condition II-53 is fulfilled, the set of transitions represented by the dashed lines of figure 2 is not coupled to the set of continuous lines. The b transverse alignment, which corresponds to the Zeeman coherence between the $m_b = -1$ and $m_b = +1$ sublevels, is only coupled to the population of the $m_a = 0$ sublevel, whatever the number of absorptions or stimulated emissions of laser photons may be. Then the alignments of b and a are not coupled, for any laser intensity.

2) When depolarizing relaxation processes exist ($\Gamma_\beta(2) > \Gamma_\beta(0)$), a coupling is induced in three steps.

a) An interaction with a laser photon couples the coherence between the $m_b = -1$ and $m_b = +1$ sublevels to the populations of these sublevels.

b) These populations are transferred into the $m_b = 0$ sublevel by a relaxation-induced transition.

c) A second interaction with the laser couples the $m_b = 0$ sublevel to the Zeeman coherence of level a .

This coupling involves two interactions with the laser : this is the reason why the first term in the perturbation development of $\gamma \chi_{ba}$ is proportional to γ^2 . In order to study the quantitative importance of this coupling, we introduce the normalized alignments $L_2^2(H)$ (equation II-27) in II-51. Using relations II-43, we obtain :

$$\frac{(\gamma_a^I(2))^2 + 4\omega_a^2}{\Gamma_a(2) + \frac{\gamma}{6}} \times \frac{L_2^2(H)}{\Gamma_a^*(2)} - \left\{ \frac{\gamma}{6} \chi_{ba} + \frac{\gamma_{ba}}{2} \left[1 - \frac{4\omega_a \omega_b}{(\Gamma_a(2) + \frac{\gamma}{6})(\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{6})} \right] \right\} \frac{L_2^2(H)}{\Gamma_b(2)} =$$

$$= \frac{M11}{\Delta} \left[1 + \gamma \left(\frac{\tau_2^2}{4} - \frac{\tau_2^1}{12} \right) \right] \quad (\text{II-54a})$$

$$-\frac{\gamma}{6} \chi_{ab} \frac{L_2^2(H)}{\Gamma_a^*(2)} + \frac{(\gamma_b^I(2))^2 + 4\omega_b^2}{\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{6}} \chi \frac{L_2^2(H)}{\Gamma_b(2)} = \frac{M_{01}^{11}}{\Delta} \left[1 + \gamma \left(\frac{\tau_2^2}{4} + \frac{\tau_2^1}{12} \right) \right] \quad (\text{II-54b})$$

where

$$\gamma_{\beta}^I(2) = \left[\left(\Gamma_{\beta}(2) + \frac{\gamma}{6} \right) \left(\Gamma_{\beta}(2) + \frac{\gamma}{6} \chi_{\beta\beta} \right) \right]^{1/2} \quad (\text{II-55})$$

It is possible to verify that, in zero magnetic field, the solution of II-54 is $\frac{L_2^2}{a} = \frac{L_2^2}{b} = 1$

1) Coupling by spontaneous emission

This coupling is of the order of $\frac{\gamma_{ba}}{2\Gamma_b(2)}$, in zero field, and, in strong field, of the order of

$$-\frac{\gamma_{ba}}{2\Gamma_b(2)} \chi \frac{g_a}{g_b} \chi \frac{\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{6} \chi_{bb}}{\Gamma_a(2) + \frac{\gamma}{6}} \quad (\text{II-56})$$

To find II-56, we have assumed that $L_2^2(\infty) \approx \left(\frac{\gamma_b^I(2)}{2\omega_b} \right)^2$ (see later equation II-59). In the experimental conditions of the 6401 A neon line (caption of figure 3 : $\gamma_{ba} = 0.2$ MHz and $\Gamma_b(2) = 6.6$ MHz), the coupling in zero field or in strong field are nearly equal to 1,5%; independently of the laser intensity.

2) Laser-induced coupling

Neglecting the transfer by spontaneous emission ($\gamma_{ba} = 0$ in II-54a) and introducing the following coupling coefficients,

$$\epsilon_{ab} = \frac{\gamma}{6\Gamma_a^*(2)} \chi \frac{\chi_{ab} \Delta}{M_{01}^{11} \left[1 + \gamma \left(\frac{\tau_2^2}{4} + \frac{\tau_2^1}{12} \right) \right]} \quad (\text{II-57a})$$

$$\epsilon_{ba} = \frac{\gamma}{6\Gamma_b(2)} \chi \frac{\chi_{ba} \Delta}{M_{01}^{11} \left[1 + \gamma \left(\frac{\tau_2^2}{4} - \frac{\tau_2^1}{12} \right) \right]} \quad (\text{II-57b})$$

We may reduce II-54 to the compact shape ($\beta, \alpha = a$ or b)

$$\left[1 + \left(\frac{2\omega_\beta}{\gamma_\beta^I(2)} \right)^2 \right] \beta L_2^2(H) = \frac{1 + \epsilon_{\alpha\beta} \alpha L_2^2(H)}{1 + \epsilon_{\alpha\beta}} \quad (\text{II-58})$$

Figure 3 shows the numerical importance of the coupling coefficients for the 6401 Å neon line. For high laser intensities, the asymptotic values of ϵ_{ab} and ϵ_{ba} are equal to 2.3% and 4.2 %.

As the coupling is weak, we can neglect it, in a first approximation. Then the Hanle effects have a Lorentzian shape of half-width $\gamma_\beta^I(2)$.

$$\beta L_2^2(H) = \left[1 + \left(\frac{2\omega_\beta}{\gamma_\beta^I(2)} \right)^2 \right]^{-1} \quad (\text{II-59})$$

$\gamma_\beta^I(2)$ is the effective relaxation rate of the transverse alignment. If, in a second approximation, we reintroduce the coupling, the Hanle effects no longer keep a Lorentzian shape

$$\beta L_2^2(H) = \beta L_2^2(H) \times \frac{1 + \epsilon_{\alpha\beta} \alpha L_2^2(H)}{1 + \epsilon_{\alpha\beta}} \quad (\text{II-60})$$

Now, the half-height half-width is given by

$$\Gamma_\beta^I(2) = \gamma_\beta^I(2) \left\{ 1 - \frac{\epsilon_{\alpha\beta} \left[g_\alpha \gamma_\beta^I(2) \right]^2}{\left[g_\alpha \gamma_\beta^I(2) \right]^2 + \left[g_\beta \gamma_\alpha^I(2) \right]^2} \right\} \quad (\text{II-61})$$

In general, the widths of the a and b Hanle effects are not very different. In fact, since the couplings are weak, the deviations from a Lorentzian shape cannot be observed: this has been verified in experiments using the 6401 Å laser line of neon [13]

3) Power-broadening of the Hanle effects

The fourth order power-broadening is obtained from a perturbation development of II-55

$$\gamma_\beta^I(2) - \Gamma_\beta(2) \simeq \frac{\gamma}{6} \quad (\text{II-62})$$

This broadening, which is proportional to the pumping rate, is the same for the two levels. As a matter of fact, this equality between the power-broadenings is nearly maintained in the exact theory (equations II-55 and 61). Figure 4 shows the difference between the Hanle effects widths for the 6401 Å line : $\gamma_a^I(2) - \gamma_b^I(2)$ and $\Gamma_a^I(2) - \Gamma_b^I(2)$ are practically independent of the laser intensity. Experimental equality of the power-broadenings has been already observed [13]. Experimental tests of formula II-61 and subsequent measurements of γ have been performed and will be presented in a forthcoming publication [14].

C) Saturation resonances

The longitudinal components are obtained by means of equations

II-18

$$\Gamma_b(0) \rho_{b0}^0 = -\Gamma_a^*(0) \rho_{a0}^0 = \frac{2\gamma}{3} X^1 \quad (\text{II-63a})$$

$$\Gamma_b(2) \rho_{b0}^2 = -\frac{\gamma}{3\sqrt{2}} (X^1 - 3X^2) \quad (\text{II-63b})$$

$$\Gamma_a(2) \rho_{a0}^2 = \frac{\gamma X^1}{3\sqrt{2}} \left(1 + \frac{\gamma_{ba}}{2\Gamma_b(2)} \right) + \frac{\gamma X^2}{\sqrt{2}} \left(1 - \frac{\gamma_{ba}}{2\Gamma_b(2)} \right) \quad (\text{II-63c})$$

Equations II-63, combined with II-48, show that the populations of the levels exhibit zero field resonance which is the sum of two contributions proportional to the Hanle effect of the a level and of the b level respectively.

For instance, for the b level, we obtain :

$$\Gamma_b(0) \rho_{b0}^0 = -\frac{2n\gamma}{3\Delta\sqrt{3}} \left[1 + \frac{\tau_2^2}{4} \gamma - \gamma \frac{1 + \left(\frac{\tau_2^2}{4} + \frac{\tau_1^2}{12} \right) \gamma}{12 M_0^{11}} \times \frac{L_b^2(H)}{\Gamma_b(2)} - \gamma \frac{1 + \left(\frac{\tau_2^2}{4} - \frac{\tau_1^2}{12} \right) \gamma}{12 M_0^{11}} \times \frac{L_a^2(H)}{\Gamma_a^*(2)} \right] \quad (\text{II-64a})$$

$$\Gamma_b^{(2)} \rho_g^2 = \frac{n\gamma}{3\Delta\sqrt{6}} \left[1 + \frac{\gamma}{2\Gamma_a^{(2)}} + \gamma \frac{1 + \left(\frac{\tau(0)}{3} - \frac{1}{6\Gamma_a^{(2)}} \right) \gamma}{6 M_0^{11}} \times \frac{L_b^2(H)}{\Gamma_b^{(2)}} - \right. \\ \left. - \gamma \frac{1 + \left(\tau(0) + \frac{1}{\Gamma_a^{(2)}} \right) \frac{\gamma}{6}}{3 M_0^{11}} \times \frac{L_a^2(H)}{\Gamma_a^{*(2)}} \right] \quad (\text{II-64b})$$

This resonance may be observed on the π components of the fluorescent lines emitted by the laser levels. For a fluorescent line $b \rightarrow g$, the intensity is proportional to [15]

$$L_{bg}^{\pi} = \rho_g^0 + A_g \rho_g^2 \sqrt{2} \quad (\text{II-65})$$

where $A_g = -1, 1/2$ or $-\frac{1}{10}$ if $J_g = 0, 1$ or 2 respectively. The relative amplitude of the saturation resonance, $(L^{\pi}(\infty) - L^{\pi}(0)) / L^{\pi}(\infty)$, is given by

$$\mathcal{J}_{bg} = 1 - \frac{\Delta}{M_0^{11}} \times \frac{1 - A_g \frac{\Gamma_b(0)}{2\Gamma_b^{(2)}}}{1 + \gamma \frac{\tau_2^2}{4} - A_g \frac{\Gamma_b(0)}{2\Gamma_b^{(2)}} \left(1 + \frac{\gamma}{2\Gamma_a^{(2)}} \right)} \quad (\text{II-66})$$

Formulae II-64-65-66 show that, in general, the shape and the amplitude of the saturation resonance depend on the fluorescence line, contrary to the case of a $J=1-J=0$ laser line. This is due to the fact that population and longitudinal alignment are not proportional. Experimental verifications of these theoretical results will be published later [14]

D) Particular cases

There are two particular cases, for which the Hanle effects are exactly Lorentzian.

1) Equality of the relaxation times of the two alignments

Equation II-48b shows that, in strong magnetic field, X^2 is proportional to τ_2^1 . The optical quadrupole moment has the same sign as

$\Gamma_b(2) - \Gamma_a^*(2)$. When $\Gamma_b(2)$ and $\Gamma_a^*(2)$ are equal (II-49), this moment vanishes. Then, in strong field, all the longitudinal components of the density matrix are proportional, independently of the laser intensity.

If, in addition, the Landé factors are equal, it is possible to show that the two Hanle effects are proportional. Indeed, when $\Gamma_a^*(2) = \Gamma_b(2)$ and $\omega_a = \omega_b$, the exact solution of II-54 is given by

$$a L_2^2 = b L_2^2 = \left[1 + \left(\frac{2\omega_b}{\Gamma_b^I(2)} \right)^2 \right]^{-1} \quad (\text{II-67})$$

where

$$\Gamma_b^I(2) = \gamma_b^I(2) \left(1 + \epsilon_{ab} \right)^{-1/2} \\ = \left\{ \left[\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{6} \right] \left[\Gamma_b(2) + \frac{\frac{\gamma}{6}}{1 + \frac{2\gamma}{9} \left(\tau(0) + \frac{1}{4\Gamma_b(2)} \right)} \right] \right\}^{1/2} \quad (\text{II-68})$$

The Hanle effects always keep a Lorentzian shape, independently of the coupling of the transverse alignments. Equation II-67 involves that $a R_2^2(H) = -b R_2^2(H)$, and subsequently that X^2 vanishes whatever the magnetic field may be. All the longitudinal components are proportional to X^1 , and exhibit a Lorentzian saturation resonance of shape $b L_2^2$ and of amplitude

$$\mathcal{S} = - \frac{b R_2^2(0)}{n} = \frac{\gamma}{6\Gamma_b^I(2)} \left[1 + \frac{2\gamma}{9} \left(\tau(0) + \frac{1}{\Gamma_b(2)} \right) \right]^{-1} \quad (\text{II-69})$$

In this case, the saturation resonance does not depend on the fluorescence lines.

2) Two relaxation times model

When conditions II-53 are fulfilled (one relaxation time per level, and no coupling by spontaneous emission), the transverse alignments are not coupled. The Hanle effects are Lorentzian and their widths are given by $\gamma_\beta^I(2)$ (equation II-55). On the other hand, the intensity of the π fluorescent

line $b \rightarrow g$ is given by (equation II-63 and II-48)

$$b^{\rho_0^0} - \sqrt{2} b^{\rho_0^2} = - \frac{\gamma}{\gamma_b \sqrt{3}} X \frac{n - \frac{R_a^2}{2} (H)}{1 + \frac{\gamma}{3} \left(\frac{1}{\gamma_b} + \frac{1}{2\gamma_a} \right)} \quad (\text{II-70})$$

if $J_g = 0$, and

$$b^{\rho_0^0} + \frac{b^{\rho_0^2}}{\sqrt{2}} = - \frac{\gamma}{2\gamma_b \sqrt{3}} X \frac{n + \frac{R_b^2}{2} (H)}{1 + \frac{\gamma}{3} \left(\frac{1}{\gamma_a} + \frac{1}{2\gamma_b} \right)} \quad (\text{II-71})$$

if $J_g = 1$.

These results can be interpreted with the diagram of figure 2. If there is no relaxation -induced transfer between the Zeeman sublevels, the set of dashed lines of fig.2 and the set of solid lines are decoupled. For each set, the diagram of the transitions is similar to the one of a $J=1-J=0$ line : in the same way as it is for this line, the Hanle effects have a Lorentzian shape. Indeed it is easy to show that, when II-53 is fulfilled, equation II-55 for $\gamma_b^I(2)$ is exactly equivalent to equation II-36, where $\frac{\gamma}{3}$ is replaced by $\frac{\gamma}{6}$. On the other hand, the intensity of the π -polarized fluorescent line $b \rightarrow g$ is proportional to the population of the $m_b=0$ sublevel, if $J_g=0$, and to the populations of the $m_b = \pm 1$ sublevels if $J_g=1$. Subsequently the $J_b=1-J_g=0$ fluorescence is connected to the Hanle effect of a only (by the solid lines) and the $J_b=1 - J_g=1$ fluorescence is connected to the b Hanle effect only (set of dashed lines). This explains why the saturation resonance is proportional to $\frac{R_a^2}{2}$ in II-70, and to $\frac{R_b^2}{2}$ in II-71. For the fluorescence emitted by the a level, the arguments are reversed.

V - TRANSITION $J_b = 1 \rightarrow J_a = 2$

Up to now, for $J=1-J=0$ and $J=1-J=1$ transitions, the laser irradiation induced population and alignment only in the excited levels. These quantities appeared in the second-order terms ("linear response"). On the other hand, if the transition is a $J_b=1 - J_a=2$ one, the laser may induce ρ_Q^4 components in the atomic density matrix. These are the components of an electric hexadecapole moment which is created in the a level from the fourth order in the laser field. There are four quantities which precess in the magnetic field : alignments of levels a (ρ_2^2) and b (ρ_2^2), hexadecapole moment of a (ρ_4^4 , ρ_4^4). The equations of motion are very complicated, and we shall be obliged to introduce a great number of notations. In order to simplify the presentation of the theory, these notations have been put together in appendix A [16]

A) Zero magnetic field. Anisotropy ratio of the fluorescent lines.

In appendix A, we define the times $\tau(0)$, $\tau(4)$ and τ_j^i (II-A1 to A 4). Matrix M_0 may be expressed as a function of these quantities (II-A5). The inversion of this matrix is easily performed and leads to the following values of the density matrix components (for a π polarization of the laser : equations II-6-10)

$$\Gamma_a^*(0) \rho_{a\sigma_0}^0 = -\sqrt{\frac{3}{5}} \Gamma_b(0) \rho_{b\sigma_0}^0 = \frac{2n\gamma}{3\Delta_0\sqrt{5}} \left[1 + \left(\frac{8\tau(4)}{35} + \frac{6\tau_3^3}{25} \right) \gamma \right]$$

(II-72a)

$$\Gamma_b(2) \sigma_0^2 = \frac{n\gamma\sqrt{2}}{15\Delta_0\sqrt{3}} \left[1 + \frac{8\gamma}{35} \left(\frac{1}{\Gamma_a(4)} - \frac{1}{\Gamma_a(2)} \right) \right] \quad (\text{II-72b})$$

$$\Gamma_a^*(2) \sigma_0^2 = - \frac{n\gamma\sqrt{14}}{15\Delta_0} \left[1 + \frac{8\gamma}{35} \left(\frac{1}{\Gamma_a(4)} + \frac{1}{\Gamma_b(2) - \frac{\gamma_{ba}}{10}} \right) \right] \quad (\text{II-72c})$$

$$\Gamma_a(4) \sigma_0^4 = - \frac{4n\gamma\sqrt{2}}{75\Delta_0\sqrt{35}} \gamma \tau_3^1 \quad (\text{II-72d})$$

where Δ_0 is the determinant of M_0 (polynomial quadratic in γ , see eq II-A6).

$\Gamma_a^*(0)$ is given by II-30 and $\Gamma_a^*(2)$ by

$$\Gamma_a^*(2) = \Gamma_a(2) \left(1 - \frac{\gamma_{ba}}{10\Gamma_b(2)} \right)^{-1} \quad (\text{II-73})$$

The density matrix for a σ -polarized laser in a zero magnetic field is obtained from II-11

$$\rho_2^2(0) \sqrt{\frac{2}{3}} = - \rho_0^2(0) = \frac{\sigma_0^2}{2} \quad (\text{II-74a})$$

$$\rho_4^4(0) \sqrt{\frac{2}{35}} = - \frac{\rho_2^4(0)}{\sqrt{10}} = \frac{\rho_0^4(0)}{3} = \frac{\sigma_0^4}{8} \quad (\text{II-74b})$$

These components may be analysed with the help of the zero-field anisotropy of the laser-induced change of the fluorescent lines. This anisotropy is defined by the zero-field ratio between the anisotropic part of the fluorescent line, which is connected to the transverse alignment, and the isotropic part, connected to the population and to the longitudinal alignment (For a precise definition of the anisotropy ratio, and the way of measuring it, see references [7][8][12][15]). Using II-74a, we obtain for the anisotropy of the $\beta \rightarrow \alpha$ fluorescence (equation 5 of [12])

$$R_{\beta\alpha} = \frac{(-)^{J_\beta+J_\alpha+1} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 2 \\ J_\beta & J_\beta & J_\alpha \end{Bmatrix}}{\left[\frac{2}{3(2J_\beta+1)} \right]^{1/2} \frac{\beta \rho_0^0(0)}{\beta \rho_0^2(0)} + (-)^{J_\beta+J_\alpha+1} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 2 \\ J_\beta & J_\beta & J_\alpha \end{Bmatrix}} \quad (\text{II-75})$$

($\beta=a$ or b)

For $J=1-J=0$ and $J=1-J=1$ transitions, ρ_0^0 and ρ_0^2 are proportional and the anisotropy does not depend on the power of irradiation. For a $J=1-J=2$ transition, due to the fact that, in addition to the electric dipole moment, an optical octopole moment ($ab\rho_Q^3$) is created at high laser intensities, ρ_0^2 and ρ_0^0 are not proportional. For each laser level, $\frac{\rho_0^2}{\rho_0^0}$ exhibits homographic variations with γ . Subsequently R depends on the laser intensity: the degree of polarization of the fluorescence decreases with increasing laser intensities.

1) For the a level, this depolarization of the fluorescence is very weak because the ratio ρ_a^2 / ρ_a^0 is not very dependent on γ . Indeed, if $\Gamma_a(4) = \Gamma_a(2)$, ρ_a^2 / ρ_a^0 is reduced of 4% when γ grows from zero to infinite. Figure 5 shows the variations of the anisotropy for $J_a \rightarrow J_f = 2$ and $J_a \rightarrow J_f = 1$ fluorescent lines (experimental conditions of note [16]). The anisotropy is practically independent of the laser intensity, as it has been observed experimentally (figure 6 of [7]).

2) For the b level, the variations of ρ_b^2 / ρ_b^0 with γ are shown in figure 6. Since ρ_b^2 / ρ_b^0 is very small, the anisotropy ratio, R_{bg} , is fairly well proportional to ρ_b^2 / ρ_b^0 , independently of the fluorescent line ($J_g = 0, 1$ or 2). Depolarization of the fluorescence, similar to the one predicted by figure 6 has been observed experimentally [8][17] (For instance, see figure 4 of [8]). At strong laser intensities, ρ_b^2 / ρ_b^0 becomes proportional to $\Gamma_a(2) - \Gamma_a(4)$ (see II-72b). In particular, in the case when $\Gamma_a(4) > \Gamma_a(2)$, the anisotropy is reversed, at high intensities. Since the anisotropy is very sensitive to

the difference between the quadrupole and hexadecapole relaxation rates of the a level, the study of the variations of R_{bg} with the laser intensity must allow the measurement of $\Gamma_a(4)$ ($\Gamma_a(2)$ may be obtained from the width of the a Hanle effect). Experiments on this point, using the 6328Å neon line, are in progress [18].

B) Hanle effects. Laser-induced hexadecapole moment in the a level.

When the magnetic field is different from zero, we must use equations II-25-26. Quantities $X^{k'}$ verify the matricial equation (II-21) :

$$M \times \begin{pmatrix} X^1 \\ X^2 \\ X^3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\frac{n}{\sqrt{3}} + \frac{b R_2^2}{10\sqrt{3}} - \frac{\sqrt{7}}{10} a R_2^2 \\ \frac{b R_2^2}{2\sqrt{15}} - \frac{\sqrt{7}}{6\sqrt{5}} a R_2^2 \\ \frac{b R_2^2}{5\sqrt{3}} - \frac{a R_2^2}{15\sqrt{7}} - \frac{\sqrt{3}}{2\sqrt{7}} a R_2^4 \end{pmatrix} \quad (\text{II-76})$$

where matrix M is given by equation II-A7. Then, $X^{k'}$ is obtained with the help of the inverse matrix, μ/Δ , (II-A8-A9), and, when replaced in II-25, leads to the following equations of motion for the transverse components of the density matrix :

$$\begin{aligned} & \left(\Gamma_a(2) + \frac{5\gamma}{42} + 2i\omega_a \right) a \rho_2^2 - \left(\frac{2\gamma}{5\sqrt{21}} + \frac{\sqrt{21}}{10} \gamma_{ba} \right) b \rho_2^2 + \frac{\gamma}{35\sqrt{3}} a \rho_2^4 - \frac{\gamma}{5\sqrt{21}} a \rho_4^4 = \\ & = - \frac{n\gamma\sqrt{7}}{10\sqrt{3}} X_a^2 + \frac{23\gamma}{210} (1 - X_{aa}^{22}) a R_2^2 - \frac{\gamma}{5\sqrt{21}} (1 - X_{ba}^{22}) b R_2^2 + \frac{\gamma}{70\sqrt{3}} (1 - X_{aa}^{42}) a R_2^4 \end{aligned}$$

(II-77a)

$$\begin{aligned}
& -\frac{2\gamma}{5\sqrt{21}} \rho_a^2 + \left(\Gamma_b(2) + \frac{7\gamma}{30} + 2i\omega_b \right) \rho_b^2 - \frac{\gamma}{5\sqrt{7}} \rho_a^4 + \frac{\gamma}{5} \rho_a^4 = \\
& = \frac{n\gamma}{30} \chi_b^2 - \frac{\gamma}{5\sqrt{21}} (1 - \chi_{ab}^{22}) \rho_a^2 + \frac{\gamma}{30} (1 - \chi_{bb}^{22}) \rho_b^2 - \frac{\gamma}{10\sqrt{7}} (1 - \chi_{ab}^{42}) \rho_a^4 \quad (\text{II-77b})
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& \frac{\gamma}{35\sqrt{3}} \rho_a^2 - \frac{\gamma}{5\sqrt{7}} \rho_b^2 + \left(\Gamma_a(4) + \frac{4\gamma}{35} + 2i\omega_a \right) \rho_a^4 - \frac{\gamma}{10\sqrt{7}} \rho_a^4 = \\
& = \frac{n\gamma}{15\sqrt{7}} \chi_a^4 + \frac{\gamma}{70\sqrt{3}} (1 - \chi_{aa}^{24}) \rho_a^2 - \frac{\gamma}{10\sqrt{7}} (1 - \chi_{ba}^{24}) \rho_b^2 + \frac{3\gamma}{28} (1 - \chi_{aa}^{44}) \rho_a^4 \quad (\text{II-77c})
\end{aligned}$$

$$-\frac{\gamma}{5\sqrt{21}} \rho_a^2 + \frac{\gamma}{5} \rho_b^2 - \frac{\gamma}{10\sqrt{7}} \rho_a^4 + \left(\Gamma_a(4) + \frac{\gamma}{5} + 4i\omega_a \right) \rho_a^4 = 0 \quad (\text{II-77d})$$

where coefficients χ are given by II-A 10 and II-A 11.

In the left-hand side of these equations, we have put together the effects of the relaxation processes, of the magnetic field, of the spontaneous transfer of alignment from b to a, and of the direct laser-induced coupling between the transverse components. The right-hand side contains the excitation term (with n) and the indirect coupling through the sublevels populations (R terms). We shall note that II-77a,b,c and d correspond to the equations of motion of ρ_a^2 , ρ_b^2 , ρ_a^4 and ρ_a^4 respectively: indeed, at weak laser intensities, when the laser-induced couplings are small, each of the equations determine the corresponding density matrix component.

In general, it is not possible to find the analytic solution of equations II-77 [19]. First we shall calculate an approximate solution which gives a straight-forward physical interpretation of the observed effects. Secondly, an exact computer calculation will be presented and its results will be compared with the approximate solution.

1) Approximate solution

a) Hanle effect of a

An important point is that the alignment of b is much smaller than the alignment of a (this is a well-known fact that the optical pumping of a J=1 level using a J=1-J=2 transition is not very efficient [7][8]). This may be verified in zero magnetic field by means of equations II-72. On the other hand, the hexadecapole moment (ρ_a^4 , ρ_a^4) is also small compared to the alignment of a. Subsequently, in equation II-77a, the laser-induced couplings of ρ_a^2 , ρ_a^4 and ρ_a^4 with ρ_a^2 are weak. For instance, we can define the importance of the zero-field coupling, $b\rho_b^2 \rightarrow a\rho_a^2$, by the ratio

$$\frac{\frac{2\gamma}{5\sqrt{21}} + \frac{\sqrt{21}}{10} \gamma_{ba}}{\Gamma_a(2) + \frac{5\gamma}{42}} \times \frac{b\rho_b^2(0)}{a\rho_a^2(0)} \quad (\text{II-78})$$

This ratio may be evaluated using II-72-74. With conditions of note [16], it has a maximum value of 3.3%, when γ is equal to 40MHz. The ρ_a^4 and ρ_a^4 couplings are maxima when γ is infinite, and are respectively equal to 2% and 7%. In the same way, we can neglect the couplings with bR_b^2 and aR_a^4 , which are of the same order of magnitude, and II-77a is reduced to

$$\left(\Gamma_a(2) + \frac{5\gamma}{42} + 2i\omega_a \right) \rho_a^2(0) = - \frac{n\gamma\sqrt{7}}{10\sqrt{3}} \chi_a^2 + \frac{23\gamma}{210} (1 - \chi_{aa}^{22}) \rho_a^2 R_a^2 \quad (\text{II-79})$$

This equation and its complex conjugate lead to a Lorentzian shape for the a Hanle effect :

$${}^{(0)}R_a^2(H) = -\frac{n\gamma\sqrt{7}}{10\sqrt{3}} X \frac{\left(\Gamma_a(2) + \frac{5\gamma}{42}\right) X_a^2}{\left(\gamma_a^I(2)\right)^2 + 4\omega_a^2} \quad (\text{II-80a})$$

$${}^{(0)}\rho_a^2(H) = {}^{(0)}R_a^2(H) \left[1 - \frac{2i\omega_a}{\Gamma_a(2) + \frac{5\gamma}{42}} \right] \quad (\text{II-80b})$$

The width is given by

$$\gamma_a^I(2) = \left(\Gamma_a(2) + \frac{5\gamma}{42}\right) \left[1 - \frac{23\gamma}{210} X \frac{1 - X_{aa}^{22}}{\Gamma_a(2) + \frac{5\gamma}{42}} \right]^{1/2} \quad (\text{II-81})$$

The variations of $\gamma_a^I(2)$ with γ are shown in figure 7 (continuous curve) for the experimental situation of note [16].

However, we must point out that equations II-80 fail at strong laser intensities. Indeed the zero field value of II-80 is

$${}^{(0)}\rho_a^2(0) = -\frac{n\gamma\sqrt{7}}{10\sqrt{3}} X \frac{X_a^2}{\Gamma_a(2) + \frac{5\gamma}{42} - \frac{23\gamma}{210} (1 - X_{aa}^{22})} \quad (\text{II-82})$$

while the exact value is (ep. II-72-74)

$${}^{(0)}\rho_a^2(0) = -\frac{n\gamma\sqrt{7}}{10\Gamma_a^*(2)\Delta_0\sqrt{3}} \left[1 + \frac{8\gamma}{35} \left(\frac{1}{\Gamma_a(4)} + \frac{1}{\Gamma_b(2) - \frac{\gamma_{ba}}{10}} \right) \right] \quad (\text{II-83})$$

As a matter of fact, ${}^{(0)}\rho_a^2(0)$ goes to zero at strong laser intensities, whilst the exact solution does not vanish. This is due to the fact that X_a^2 vanishes when γ is infinite. Subsequently, at very high intensities, the couplings with ρ_b^2 , ρ_a^4 and ρ_a^4 are not negligible compared to the source-term, nX_a^2

(though these couplings are weak compared to ${}_a\rho_2^2$). In order to study the magnitude of the neglected terms, we can consider $({}_a\rho_2^2(0) - (0) {}_a\rho_2^2(0)) / {}_a\rho_2^2(0)$. In the conditions of [16], this quantity is equal to 3% and 8%, when γ is equal to 100 and 200 MHz respectively. For these values of γ , the approximations are fairly valid. Assuming that the Hanle effect shape given by II-80 a is correct, we can "renormalize" its amplitude with the exact zero-field solution. II-80a is then replaced by

$$({}^0) {}_a R_2^2(H) = {}_a\rho_2^2(0) ({}^0) {}_a L_2^2(H) \quad (\text{II-84})$$

where ${}_a\rho_2^2(0)$ is the exact zero-field solution (II-83) and where

$$({}^0) {}_a L_2^2(H) = \left[1 + \left(\frac{2\omega_a}{\gamma_a(2)} \right)^2 \right]^{-1} \quad (\text{II-85})$$

b) Laser-induced hexadecapole moment in level a

Equation II-77d shows that a $\Delta m=4$ Zeeman coherence (${}_a\rho_4^4$) is created by the laser in the a level. This process can be understood with the help of the diagram of the transition (figure 8). For instance, the stimulated emission of a linearly σ -polarized photon creates coherence between the $m_a = \pm 2$ sublevels, from the Zeeman coherence between the $m_b = \pm 1$ sublevels (through the transitions represented by solid lines in figure 8). This corresponds to the creation of ${}_a\rho_4^4$ from ${}_b\rho_2^2$. In the same way, from the $\Delta m=2$ coherence in level a (${}_a\rho_2^2$ and ${}_a\rho_4^4$), the absorption of a laser photon induces $\Delta m=4$ coherence (for instance, by adding coherence $m_a=0 \leftrightarrow m_a=-2$ to coherence $m_a=0 \leftrightarrow m_a=2$)

To solve II-77d, we shall neglect the ${}_a\rho_2^4$ and ${}_b\rho_2^2$ terms. Indeed, on the one hand, the ${}_a\rho_2^4$ contribution is never more than 10% of the ${}_a\rho_2^2$ contribution. On the other hand, ${}_a\rho_4^4$ is important at high intensities only, because it appears from the fourth order in the laser field. Since

$b\rho_2^2(0)$ goes to zero for strong intensities (see equ. II-72b and figure 6), we neglect it compared with $a\rho_2^2$. Then II-77d is reduced to

$$\left(\Gamma_a(4) + \frac{\gamma}{5} + 4i\omega_a\right) a\rho_4^4(H) = \frac{\gamma}{5\sqrt{21}} a\rho_2^2(H) \quad (\text{II-86})$$

Obviously, since the approximations leading to II-86 are rather crude, II-86 is no longer verified by the zero-field solution, II-72. However, as it has been done for $a\rho_2^2$, II-86 may be "renormalized" by replacing $\gamma/(5\sqrt{21})$ by $(\Gamma_a(4) + \frac{\gamma}{5}) a\rho_4^4(0)/a\rho_2^2(0)$ where $a\rho_4^4(0)$ and $a\rho_2^2(0)$ are the exact zero-field solutions. Using II-80b and II-84, we finally obtain

$$a\rho_4^4(H) = a\rho_4^4(0) \frac{1 - \frac{2i\omega_a}{\Gamma_a(2) + 5\gamma/42}}{1 + \frac{4i\omega_a}{\Gamma_a(4) + \gamma/5}} a\rho_2^2(H) \quad (\text{II-87})$$

The variations of $a\rho_4^4(H)$ with the magnetic field have been represented in figure 9 (solid curve) when the pumping rate, γ , is equal to 100MHz. In the same figure, the dashed curve gives the exact solution as obtained by a computer calculation (see following section).

c) Hanle effect of b

In order to obtain the shape of the b Hanle effect, we must solve the equations of motion of the b transverse alignment, II-77b. The principal difficulty comes from the fact that this alignment is very small at high laser intensities (see equation II-72b and figure 6). Consequently, in II-72b, we cannot neglect the various couplings with the $a\rho_2^2$, $a\rho_2^4$ and $a\rho_4^4$ components: their contributions are as large as the direct excitation. Since $a\rho_4^4$ and $a\rho_2^2$ have been previously calculated, the only component to determine is $a\rho_2^4$.

When $\Gamma_a(4)$ is equal to $\Gamma_a(2)$, $a\rho_2^4(H)$ and $a\rho_2^2(H)$, both corresponding to a $\Delta m=2$ Zeeman coherence in the a level, exhibit similar variations with the magnetic field, for weak laser intensities. We shall assume that $a\rho_2^4(H)$ and $a\rho_2^2(H)$ are proportional, whatever the intensity may be. On the other hand, x_{ab}^{22} and x_{ab}^{42} have close values (we shall see later that they are exactly equal when there is no depolarizing processes :

$\Gamma_\beta(k) = \gamma_\beta$). Then assuming $x_{ab}^{22} = x_{ab}^{42}$ and introducing the following parameter

$$\epsilon = \frac{\sqrt{3}}{2} \times \frac{a\rho_2^4(0)}{a\rho_2^2(0)} \quad (\text{II-88})$$

equation II-77b becomes [20]

$$\begin{aligned} \left(\Gamma_b(2) + \frac{7\gamma}{30} + 2i\omega_b \right) b\rho_2^2 - \frac{2\gamma}{5\sqrt{21}} (1+\epsilon) a\rho_2^2 + \frac{\gamma}{5} a\rho_4^4 = \\ = \frac{n\gamma}{30} x_b^2 + \frac{\gamma}{30} (1-x_{bb}^{22}) bR_2^2 - \frac{\gamma}{5\sqrt{21}} (1-x_{ab}^{22})(1+\epsilon) aR_2^2 \end{aligned} \quad (\text{II-89})$$

Using equation II-80b and eliminating the imaginary part of $b\rho_2^2$ between II-89 and its complex conjugate, we obtain

$$\begin{aligned} \frac{\left(\gamma_b^I(2) \right)^2 + 4\omega_b^2}{\Gamma_b(2) + \frac{7\gamma}{30}} bR_2^2(H) = \frac{n\gamma}{30} x_b^2 - \frac{\gamma}{5} \text{Re} \left[\left(1 - \frac{2i\omega_b}{\Gamma_b(2) + \frac{7\gamma}{30}} \right) a\rho_4^4(H) \right] + \\ + \frac{\gamma(1+\epsilon)}{5\sqrt{21}} \left[1 + x_{ab}^{22} - \frac{8\omega_a \omega_b}{\left(\Gamma_a(2) + \frac{5\gamma}{42} \right) \left(\Gamma_b(2) + \frac{7\gamma}{30} \right)} \right] aR_2^2(H) \end{aligned} \quad (\text{II-90})$$

where

$$\gamma_b^I(2) = \left(\Gamma_b(2) + \frac{7\gamma}{30} \right) \left(1 - \frac{\gamma}{30} \times \frac{1 - x_{bb}^{22}}{\Gamma_b(2) + \frac{7\gamma}{30}} \right)^{1/2} \quad (\text{II-91})$$

When the $a\rho_4^4$ and $a\rho_2^2$ terms are neglected in II-90, bR_2^2 has a Lorentzian

shape of width $\gamma_b^I(2)$. This "uncoupled" Hanle effect is strongly power-broadened by the laser : for $\gamma=100\text{MHz}$, the power-broadening of b is three times that of level a. This is due to the strong probability of the transitions issued from the $m_b = \pm 1$ sublevels on the one hand, and on the other hand to the weakness of the coherence restitution through the sublevels populations (R_b^2 term in II-89) : here, this is possible through the $m_a = 0 \rightarrow m_b = \pm 1$ transitions only and the relative transition probability is 1 (see figure 8).

The $\Delta m=4$ coherence of a is transferred to the b level through the $m_a = \pm 2 \rightarrow m_b = \pm 1$ transitions. This transfer involves the second term of the right hand side of II-90. Since $\rho_a^4(0)$ is negative, this contribution has the same sign as the direct excitation. The resonance induced by this coupling is very narrow, because ρ_a^4 evolves at four times the Larmor frequency.

The $\Delta m=2$ coherence in level a (ρ_a^2, ρ_a^4) is transferred to b through either the σ^+ transitions ($m_a = -2 \rightarrow m_b = -1$ and $m_a = 0 \rightarrow m_b = 1$), or the σ^- transitions. This coupling has the same sign as $\rho_a^2(0)$ which is negative (last term of II-90). The corresponding resonance will appear as a dip in the Hanle effect.

By putting II-84-85 and 87 in II-90, we obtain the approximate shape of the Hanle effect. This is shown in figure 10 for $\gamma=100\text{ MHz}$ (continuous curve). On the broad uncoupled Hanle effect, a narrow central resonance appears due to the $\Delta m=4$ coherence of a, and a broader dip due to the $\Delta m=2$ coherence of a. The exact solution, obtained by a computer calculation, exhibits the expected shape but the contrast of the resonance is smoothed (dashed curve of figure 10).

2) Computer calculation

The previous calculation has allowed us to exhibit the principal features of the solution, and to analyse its physical interpretation. But

we have obtained results which are essentially qualitative. A quantitative comparison between theory and experiments is possible with the exact solution of II-77 only. This solution has been obtained by means of a computer calculation. With the help of the 4×4 matrices Γ , Ω , χ (equations II-A13 to A15) and of the column vectors ρ , R and Λ (II-A16-17), equations II-77 may be written as a compact expression

$$(\Gamma + i \Omega)\rho = n \Lambda + \chi R \quad (\text{II-92})$$

II-92 is equivalent to two sets of coupled equations :

$$\begin{aligned} \Gamma R - \Omega \text{Im}(\rho) &= n \Lambda + \chi R \\ \Gamma \text{Im}(\rho) + \Omega R &= 0 \end{aligned} \quad (\text{II-93})$$

where $\text{Im}(\rho)$ is the imaginary part of ρ . Then the formal solution of II-93 is

$$R = n(\Gamma - \chi + \Omega \Gamma^{-1} \Omega)^{-1} \Lambda \quad (\text{II-94})$$

The inversion of matrices Γ and $(\Gamma - \chi + \Omega \Gamma^{-1} \Omega)$ have been performed by a computer for each value of γ and of the magnetic field. Let us analyse the results concerning the Hanle effects.

a) Hanle effect of a

The computer solution shows that the couplings of $a\rho_4^4$, $a\rho_2^4$ and $b\rho_2^2$ with $a\rho_2^2$ are too small for implying any important deviations of the Hanle effect shape from a Lorentzian one. When $\gamma = 100$ MHz, the deviations are lower than 1% of the total amplitude of the Hanle effect. This result agrees with the fact that the experiments have always shown a Lorentzian shape for the Hanle effect of a $J=2$ level optically pumped by means of a $J=1-J=2$ transition (see ref [7][8][17] for the 6328 \AA and 1.15μ neon transitions). Nevertheless, the couplings induce a change in the Hanle effect width. The power-broadening is reduced and the apparent relaxation rate of the transverse alignment, $\Gamma_a^I(2)$, such as obtained from the exact solution, is smaller than the one deduced when the couplings are neglected, $\gamma_a^I(2)$ (see dashed curve of

figure 7)[²¹]

b) Hanle effect of b

The results of the computer calculation are shown in figure 11. At very low laser intensities, the couplings are vanishing and the Hanle effect approximately has a Lorentzian shape (curve 1, $\gamma=10\text{MHz}$). When the laser intensity grows, the couplings with ρ_a^2 and ρ_b^4 become important. At first, the ρ_b^4 coupling is the only one visible, and implies a narrow central peak on the top of the Hanle effect (curve 2, $\gamma=50\text{MHz}$). The ρ_a^2 coupling cannot be observed because the Hanle effects of levels a and b have nearly the same widths. Afterwards, when the b Hanle effect is more power-broadened than the Hanle effect of a, a dip appears due to the ρ_a^2 coupling (curve 3, $\gamma=70\text{MHz}$). The dip becomes deeper and deeper with increasing laser intensities (curve 4, $\gamma=130\text{MHz}$). This behaviour of the Hanle effect shape has been observed in recent experiments[²²].

c) Saturation resonances. Anomalous behaviour of the $J_a=2 \rightarrow J_f=2$ π -polarized fluorescence.

Using II-18 and II-76, we obtain the following expressions for the longitudinal components of the density matrix

$$\begin{aligned} \Gamma_b(0) \rho_b^0 &= -\frac{\sqrt{5}}{\sqrt{3}} \Gamma_a^*(0) \rho_a^0 = \\ &= \frac{2\gamma}{3\Delta} \left(-\frac{n}{\sqrt{3}} \xi_b^0 + \frac{\xi_b^{20}}{10\sqrt{3}} \rho_b^2 - \frac{\sqrt{7}}{10} \xi_a^{20} \rho_a^2 - \frac{3}{2\sqrt{21}} \xi_a^{40} \rho_a^4 \right) \quad (\text{II-95a}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \Gamma_b(2) \rho_b^2 &= \frac{\gamma\sqrt{2}}{30\Delta} \left(-\frac{n}{\sqrt{3}} \xi_b^2 + \frac{\xi_{bb}^{22}}{\sqrt{3}} \rho_b^2 + \frac{2\xi_{ab}^{22}}{\sqrt{7}} \rho_a^2 - \frac{6\sqrt{3}}{\sqrt{7}} \xi_{ab}^{42} \rho_a^4 \right) \\ & \quad (\text{II-95b}) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \Gamma_a(2) \rho_a^2 &= \frac{\gamma\sqrt{42}}{30\Delta} \left(-\frac{n}{\sqrt{3}} \xi_a^2 - \frac{2\xi_{ba}^{22}}{7\sqrt{3}} \rho_b^2 + \frac{3\xi_{aa}^{22}}{7\sqrt{7}} \rho_a^2 - \frac{2\sqrt{3}}{7\sqrt{7}} \xi_{aa}^{42} \rho_a^4 \right) \\ & \quad (\text{II-95c}) \end{aligned}$$

where coefficients ξ are polynomial functions of γ (see equations II-A18 to A20). The populations of the levels exhibit resonant variations in zero field which are connected to the real parts of $a\rho_2^2$, $a\rho_2^4$ and $b\rho_2^2$. These saturation resonances may be observed on the π fluorescence of the levels. For the b level, the intensity of the fluorescence is given by II-65. For level a, the intensity of the fluorescence a \rightarrow f is proportional to

$$L_{af}^{\pi} = a\rho_0^0 + A_f a\rho_0^2 \sqrt{\frac{7}{10}} \quad (\text{II-96})$$

where $A_f = -1, 1$ or $-2/7$ if $J_f = 1, 2$ or 3 .

The variations of the a \rightarrow f fluorescence with the magnetic field are proportional to

$$1 - \mathcal{Y}_{af}^{b2} \beta L_2^2(H) - \mathcal{Y}_{af}^{a2} L_2^2(H) - \mathcal{Y}_{af}^{a4} L_2^4(H)$$

where $\beta L_2^k(H)$ is the "normalized Hanle effect" (equation II-27) and coefficients \mathcal{Y} are determined with the help of the zero-field components (II-72-74)

$$\mathcal{Y}_{af}^{b2} = \frac{\gamma}{300\Gamma_b(2)} \times \frac{\xi_b^{20} - A_f \frac{\Gamma_a^*(0)}{\Gamma_a(2)} \xi_{ba}^{22}}{\xi_a^0 + \frac{7A_f}{20} \frac{\Gamma_a^*(0)}{\Gamma_a(2)} \xi_a^2} \times \frac{1 + \frac{8\gamma}{35} \left(\frac{1}{\Gamma_a(4)} - \frac{1}{\Gamma_a(2)} \right)}{\Delta_0} \quad (\text{II-97a})$$

$$\mathcal{Y}_{af}^{a2} = \frac{7\gamma}{100\Gamma_a^*(2)} \times \frac{\xi_a^{20} - \frac{3A_f}{14} \frac{\Gamma_a^*(0)}{\Gamma_a(2)} \xi_{aa}^{22}}{\xi_a^0 + \frac{7A_f}{20} \frac{\Gamma_a^*(0)}{\Gamma_a(2)} \xi_a^2} \times \frac{1 + \frac{8\gamma}{35} \left(\frac{1}{\Gamma_a(4)} + \frac{1}{\Gamma_b(2) - \frac{\gamma_{ba}}{10}} \right)}{\Delta_0} \quad (\text{II-97b})$$

$$\mathcal{Y}_{af}^{a4} = -\frac{2\gamma}{700\Gamma_a(4)} \times \frac{\xi_a^{40} + \frac{A_f}{5} \frac{\Gamma_a^*(0)}{\Gamma_a(2)} \xi_{aa}^{42}}{\xi_a^0 + \frac{7A_f}{20} \frac{\Gamma_a^*(0)}{\Gamma_a(2)} \xi_a^2} \times \frac{\tau_3^1 \gamma}{\Delta_0} \quad (\text{II-97c})$$

$\mathcal{Y}_{af}^{\beta k}$ gives the amplitude of the βR_2^k contribution to the saturation resonance, relatively to the laser-induced change of the fluorescence in strong magnetic field. The total amplitude of the saturation resonance is

$$\mathcal{Y}_{af} = \mathcal{Y}_{af}^{b2} + \mathcal{Y}_{af}^{a2} + \mathcal{Y}_{af}^{a4} \quad (\text{II-98})$$

When \mathcal{Y}_{af} is positive, the saturation resonance is in the opposite direction to the laser-induced change of the fluorescence, and reduces it in zero field. This is the result obtained for the laser-induced fluorescence, in the case of a $J_b=1-J_a=0$ or a $J_b=1-J_a=1$ laser pumping. Here, it is also verified for the $J_a=2 \rightarrow J_f=1$ fluorescence. As it is shown in figure 12, \mathcal{Y}_{a1} is always positive (solid curve). The dashed curves (1), (2) and (3) give the relative contributions of $a R_2^2$, $a R_2^4$ and $b R_2^2$ respectively. Since the alignment of level a is much larger than the alignment of level b and the hexadecapole moment of level a, $a R_2^2$ provides the leading contribution, and the saturation resonance practically has the same shape as the Hanle effect of a.

$a R_2^2$ also provides the leading contribution to the saturation resonance of the $J_a=2 \rightarrow J_f=2$ fluorescence (figure 13). However \mathcal{Y}_{a2} exhibits a curious behaviour as a function of the laser intensity. \mathcal{Y}_{a2} , which is positive at weak laser intensities, becomes negative when the laser intensity grows. We obtain the surprising result that the saturation resonance increases the laser-induced change of the $J_a=2 \rightarrow J_f=2$ fluorescence in zero magnetic field. This anomalous behaviour of the saturation has been experimentally observed on the 6328\AA and 1.15μ neon laser lines [²³]. We shall see in the following section, that this anomaly, which is due to higher order non-linear effects, is closely connected to the transit time of the atom in the b level.

For the $J_a=2 \rightarrow J_f=3$ fluorescence line and for the fluorescence emitted from the b level ($J_b=1 \rightarrow J_g=0,1$ or 2), the behaviour of the saturation resonance is similar to that of the $J_a=2 \rightarrow J_f=1$ fluorescence: \mathcal{Y} is also po-

sitive and the shape of the resonance is practically the same as that of the Hanle effect of a. However, the saturation amplitude is rather smaller for these lines than for the $J_a=2 \rightarrow J_f=1$ line (see fig 14) [24] [25]

D) Two relaxation times model.

When there is one relaxation rate for every level ($\Gamma_\beta(k)=\gamma_\beta$) and no spontaneous emission ($\gamma_{ba}=0$), the equations may be simplified. In this case, the set of the transitions represented in figure 8 by continuous lines is not coupled to the set of dashed lines, and each set may be solved separately.

1) Hanle effects

The coherence between the $m_a = \pm 1$ sublevels is given by

$$a_{1,-1}^{\rho} = \frac{\sqrt{3} a_{2,0}^{\rho 2} - 2 a_{2,0}^{\rho 4}}{\sqrt{7}} \quad (\text{II-99})$$

(We define the Zeeman coherence between sublevels m and m' by the usual notation $\rho_{mm'}$.)

The equation of motion of $a_{1,-1}^{\rho}$ is deduced from II-77a and 77c. Using the symmetry relations of the χ coefficients (appendix A, equations 21-23), we obtain

$$\left(\gamma_a + \frac{\gamma}{10} + 2i\omega_a\right) a_{1,-1}^{\rho} = -\frac{n\gamma}{10} \chi_a + \frac{\gamma}{10} (1 - \chi_a) R_{1,-1} \quad (\text{II-100})$$

where $R_{1,-1}$ is the real part of $a_{1,-1}^{\rho}$.

As it was evident on figure 8, $a_{1,-1}^{\rho}$, which is connected to the set of dashed lines only, is not coupled to the other Zeeman coherences. The coupling diagram is similar to that of a $J=1-J=0$ transition, and, subsequently, $R_{1,-1}$ exhibits Lorentzian variations with the magnetic field. Introducing the mean coherence between the $m_a=0$ and $m_a = \pm 2$ sublevels,

$$a\rho_2 = \frac{1}{\sqrt{2}} (a\rho_{0,-2} + a\rho_{2,0}) = \frac{2a\rho_2^2 + \sqrt{3}a\rho_2^4}{\sqrt{7}} \quad (\text{II-101})$$

We find the following equations of motion, for the Zeeman coherences coupled by the continuous lines of figure 8 :

$$\begin{aligned} & (\gamma_a + \frac{2\gamma}{15} + 2i\omega_a) a\rho_2 - \frac{\gamma}{5\sqrt{3}} b\rho_2^2 - \frac{\gamma}{10\sqrt{3}} a\rho_2^4 = \\ & = -\frac{n\gamma}{5\sqrt{3}} X'_a + \frac{7\gamma}{60} (1 - X'_{aa}) aR_2 - \frac{\gamma}{10\sqrt{3}} (1 - X_{ba}) bR_2^2 \end{aligned} \quad (\text{II-102a})$$

$$\begin{aligned} & -\frac{\gamma}{5\sqrt{3}} a\rho_2 + (\gamma_b + \frac{7\gamma}{30} + 2i\omega_b) b\rho_2^2 + \frac{\gamma}{5} a\rho_2^4 = \\ & = \frac{n\gamma}{30} X_b^2 - \frac{\gamma}{10\sqrt{3}} (1 - X_{ab}) aR_2 + \frac{\gamma}{30} (1 - X_{bb}^2) bR_2^2 \end{aligned} \quad (\text{II-102b})$$

$$-\frac{\gamma}{10\sqrt{3}} a\rho_2 + \frac{\gamma}{5} b\rho_2^2 + (\gamma_a + \frac{\gamma}{5} + 4i\omega_a) a\rho_2^4 = 0 \quad (\text{II-102c})$$

where coefficients χ are defined by II-A22. The equations of motion are reduced to a set of three equations, but it is not much easier to find the solution of II-102 than that of II-77. The only interest of II-102 lies in its straightforward physical interpretation, since $a\rho_2$, $b\rho_2^2$ and $a\rho_2^4$ are associated with clearly defined Zeeman coherences : $a\rho_2$ with the coherence between the $m_a=0$ and $m_a=\pm 2$ sublevels, $b\rho_2^2$ with the coherence between the $m_b=\pm 1$ sublevels and $a\rho_2^4$ with the coherence between the $m_a=\pm 2$ sublevels. Then each coupling term of II-102 is straightforwardly associated with some of the transitions represented by continuous lines on figure 8. For instance, two simultaneous σ^+ (or σ^-) transitions involve a coupling between the $\Delta m=2$

coherences of levels a and b ($\rho_{a2} \leftrightarrow \rho_{b2}^2$). And so on

2) Saturation resonances

For the π fluorescence emitted from the b level, elementary arguments lead to simplifying the results. For instance, the intensity of the π component of the $J_b=1 \rightarrow J_g=0$ fluorescence is proportional to the population of the $m_b=0$ sublevel. Since this sublevel is coupled to the $m_a = \pm 1$ sublevels only (dashed lines of figure 8), the saturation resonance is associated with the coherence between these sublevels. Indeed, using II-65, II-95 and the symmetry relations of coefficients ξ (II-A24), we show easily that the intensity of this fluorescent line, $\rho_{b0}^0 - \rho_{b0}^2 \sqrt{2}$, is proportional to $n + R_{a1,-1}$. Then the saturation resonance has the same Lorentzian shape as $R_{a1,-1}$. On the other hand, the intensity of the $J_b=1 \rightarrow J_g=1$ fluorescence, $\rho_{b0}^0 + \frac{\rho_{b0}^2}{\sqrt{2}}$, is proportional to the population of the $m_b = \pm 1$ sublevels, and subsequently is coupled, by the continuous lines of figure 8, to the Zeeman coherence of b (R_{b2}^2) and to the Zeeman coherence between the $m_a=0$ and $m_a=\pm 2$ sublevels of a (R_{a2}). For the fluorescence from level a, these kinds of arguments are no longer possible, and every saturation resonance is associated with all the $\Delta m=2$ Zeeman coherences : $R_{a1,-1}$, R_{a2} and R_{b2}^2 .

In order to determine the physical origin of the anomalous behaviour of the saturation of the $J_a=2 \rightarrow J_f=2$ fluorescence, we have looked for what happens with this anomalous behaviour in the two relaxation times model. Figure 15 shows the variations of the amplitude of the saturation resonance, \mathcal{S}_{a2} , as a function of γ/γ_a , for different values of ratio γ_b/γ_a . The zero laser intensity slope of the curves ($11\gamma/270\gamma_a$) represents the \mathcal{S} value such as obtained from the fourth order perturbation calculation. At high intensities, the asymptotic value of \mathcal{S}_{a2} is positive or negative according as γ_b/γ_a is

higher or smaller than $(\sqrt{41} - 1)/4 \approx 1.35$. Subsequently, two cases are possible.

1) If γ_b is higher than $1.35\gamma_a$, \mathcal{S}_{a2} keeps the sign of the fourth order contribution, independently of the laser intensity : the zero-field saturation resonance always reduces the laser-induced change of the fluorescence intensity.

2) If γ_b is smaller than $1.35\gamma_a$, \mathcal{S}_{a2} , positive at weak laser intensities, becomes negative when the laser intensity grows. This reversal of the saturation resonance increases with decreasing γ_b/γ_a ratios. Subsequently, the anomalous behaviour of the saturation seems to be closely connected to the mean lifetime of the b level, i.e to the transit time of the atom in this level.

This effect may be interpreted by using the diagram of figure 8 and pointing out that the population of the $m_a = \pm 2$ sublevels plays a leading part in the intensity of the $J_a = 2 \rightarrow J_f = 2$ fluorescence. Indeed the $m_a = 2 \rightarrow m_f = 2$ transition is four times more probable than the $m_a = 1 \rightarrow m_f = 1$ transition, and the $m_a = 0 \rightarrow m_f = 0$ transition is forbidden.

Let us analyse the processes leading to the saturation resonance in the $m_a = 2$ sublevel. The stimulated emission of a σ -polarized photon by an atom in the $m_b = 1$ sublevel creates coherence between sublevels $m_a = 0$ and $m_a = 2$ (second order contribution in a perturbation expansion in the laser field). A new interaction with the laser (now a photon absorption) couples this coherence with the populations of sublevels $m_a = 0$, $m_b = 1$ and $m_a = 2$, and produces in these sublevels a saturation resonance which reduces in zero magnetic field the laser-induced populations changes (fourth order term). To the sixth order, the stimulated emission of a σ -laser photon brings back a part of the $m_b = 1$ population into the $m_a = 2$ sublevel. Since the laser-induced populations changes

of these two sublevels are reverse, the latter process sets the saturation resonance of sublevel $m_b=1$ over against that of $m_a=2$, and tends to an increasing of the zero-field population change of $m_a=2$. This effect is important because the $m_b=1 \rightarrow m_a=2$ transition is sixth times more probable than the $m_b=1 \rightarrow m_a=0$ transition. On the other hand, this effect increases when the laser intensity is strong, and when the population lifetime of level b becomes longer than that of level a (then, the contribution of the $m_b=1$ population grows relatively to that of $m_a=2$).

These considerations explain the behaviour of \mathcal{S}_{a2} such as shown by figure 15. Such a behaviour has been experimentally observed [23]. The other sublevels do not exhibit the same behaviour as that of $m_a=2$, due to the weak values of the involved transition probabilities. Subsequently, the other fluorescence lines from levels b and a do not show the same anomalous character as the one of the $J_a=2 \rightarrow J_f=2$ line, since the $m_a=\pm 2$ sublevels do not bring a leading contribution to these lines any more.

VI - CONCLUSION

In this article, we have analysed the laser pumping of atoms by means of a non-perturbative method, valid at arbitrary laser intensities. The principal predictions are

- 1) For a $J_b=1-J_a=0$ transition, the Hanle effect of b always keeps a Lorentzian shape and the populations of the levels exhibit a zero-field saturation resonance proportional to the Hanle effect.
- 2) For a $J_b=1-J_a=1$ transition, the Hanle effects of both levels also have a Lorentzian shape with a good approximation, and their power-broadenings are similar. The saturation resonances come from both the Hanle effects of a and b.
- 3) For a $J_b=1-J_a=2$ transition, whilst the Hanle effect of level a is Lorentzian

for all the obtainable laser intensities, the one of level b presents a departure from the Lorentzian shape which is due to the couplings with the quadrupole and hexadecapole moments of level a. The saturation resonances come mainly from the Hanle effect of a. The amplitude of the saturation resonance of the $J_a=2 \rightarrow J_f=2$ fluorescence exhibits an anomalous behaviour because of higher order effects.

Most of these theoretical predictions have been experimentally observed. A comprehensive study of the experimental verifications will be presented in a forthcoming paper.

The comparison of the exact theory with the fourth order perturbation calculation [1] [26] shows that, for $J=1-J=0$ and $J=1-J=1$ transitions, the perturbation calculation deviates from the exact one in a quantitative way only. The physical phenomena are the same in the two theories. For a $J=1-J=2$ transition, the differences are much more spectacular because of the existence of typically higher order effects (sixth order and more), in particular the creation of high order multipole moments in the excited levels. This latter effect is one of the most interesting features of the optical pumping using a laser source. DECOMPS and DUMONT [7] [8] have shown that the study of the atomic linear response leads to the determination of the relaxation rates of the population, $\Gamma(0)$, and of the alignment $\Gamma(2)$ of excited levels having a non zero angular momentum. In the particular case of a $J=1-J=1$ transition, all the atomic parameters can be deduced from the linear response (obtained by extrapolation at zero laser intensity). Then the experimental fit of the nonlinear effects only implies the determination of the pumping rate, γ . On the other hand, the analysis of the nonlinear effects in a $J=1-J=0$ transition must lead to the measurement of the relaxation rate of the population of the $J=0$ level. This kind of measurement is interesting, but there are other experimental methods (for instance, the study of

the level decay by the delayed coincidence method [27]). More original is the possibility of measuring the hexadecapole relaxation rate from an analysis of the nonlinear effects in a $J=1-J=2$ transition. Pressure-broadening of this relaxation rate and subsequent measurements of the collisions cross-section are of interest for the study of the multipole expansion of the interaction involved in depolarizing atomic collisions.

Appendix ANotations for the J=1 - J=2 transition

In section V, we use the following quantities which have the dimension of a time

$$\tau(0) = \frac{1}{\Gamma_b(0)} + \frac{3}{5\Gamma_a(0)} - \frac{3\gamma_{ba}}{5\Gamma_a(0)\Gamma_b(0)} \quad (\text{II-A1})$$

$$\tau(4) = \frac{1}{\Gamma_a(4)} \quad (\text{II-A2})$$

$$\tau(p,q,r) = \frac{p}{\Gamma_b(2)} + \frac{q}{\Gamma_a(2)} - \frac{r}{10} \frac{\gamma_{ba}}{\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \quad (\text{II-A3})$$

where p,q and r are any real numbers. We also introduce matrix τ_j^i ($i,j=1,2,3$) with the help of particular $\tau(p,q,r)$

$$(\tau_j^i) = \begin{pmatrix} \tau(-\frac{1}{21}, 1, 1) & \tau(-\frac{1}{7}, 1, 3) & \tau(1, 1, 21) \\ \tau(-\frac{1}{7}, 1, 1) & \tau(-\frac{3}{7}, 1, 3) & \tau(1, \frac{1}{3}, 7) \\ \tau(1, 1, 1) & \tau(1, \frac{1}{3}, 1) & \tau(1, \frac{1}{21}, 1) \end{pmatrix} \quad (\text{II-A4})$$

where i is the column index and j the row index.

Matrix M_0 (equation II-10) is given by :

$$M_0 = \begin{pmatrix} 1 + \frac{2\tau(0)}{9} \gamma + \frac{7\tau_1^1}{75} \gamma & -\frac{\sqrt{6}}{75} \tau_1^3 \gamma \\ -\frac{\sqrt{6}}{75} \tau_3^1 \gamma & 1 + \frac{6\tau_3^3}{25} \gamma + \frac{8\tau(4)}{35} \gamma \end{pmatrix} \quad (\text{II-A5})$$

and its determinant by

$$\Delta_0 = 1 + \gamma \left(\frac{2\tau(0)}{9} + \frac{7\tau_1^1}{75} + \frac{6\tau_3^3}{25} + \frac{8\tau(4)}{35} \right) + \frac{4\gamma^2}{75} \left(\tau(0)\tau_3^3 + \frac{20}{21}\tau(0)\tau(4) + \frac{2\tau_1^1\tau(4)}{5} + \frac{8}{21\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right)$$

(II-A6)

Matrix M (equation II-22) is given by

$$M = \begin{pmatrix} 1 + \frac{2\tau(0)}{9} \gamma + \frac{7\tau_1^1}{300} \gamma & -\frac{7\tau_1^2}{60\sqrt{5}} \gamma & \frac{\tau_1^3}{75} \gamma \\ -\frac{7\tau_2^1}{60\sqrt{5}} \gamma & 1 + \frac{7\tau_2^2}{60} \gamma & -\frac{\tau_2^3}{5\sqrt{5}} \gamma \\ \frac{\tau_3^1}{75} \gamma & -\frac{\tau_3^2}{5\sqrt{5}} \gamma & 1 + \frac{6\tau(4)}{70} \gamma + \frac{4\tau_3^3}{25} \gamma \end{pmatrix} \quad (\text{II-A7})$$

Its determinant is

$$\begin{aligned} \Delta = & 1 + \gamma \left(\frac{2\tau(0)}{9} + \frac{1}{30} \tau \left(\frac{19}{3}, \frac{31}{7}, 16 \right) + \frac{6\tau(4)}{70} \right) \\ & + \frac{\gamma^2}{10} \left(\frac{7}{15} \tau(0) \tau \left(1, \frac{29}{49}, \frac{17}{7} \right) + \frac{4}{21} \tau(0) \tau(4) + \frac{\tau(4)}{25} \tau \left(\frac{23}{21}, 3, 8 \right) + \frac{37}{210\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right) \\ & + \frac{\gamma^3}{100} \left(\frac{2}{9} \tau(0) \tau(4) \tau_2^2 + \frac{32}{105} \frac{\tau(0)}{\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} + \frac{1}{225} \frac{\tau(4)}{\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right) \end{aligned}$$

(II-A8)

The inverse of M is μ/Δ , where μ is defined by the following matrix elements,

$\mu^{k'l'}$ (k' for the row and l' for the column).

$$\mu^{11} = 1 + \frac{\gamma}{10} \left(\frac{7\tau_2^2}{6} + \frac{8\tau_3^3}{5} + \frac{6\tau(4)}{7} \right) + \frac{\gamma^2}{100} \left(\tau_2^2 \tau(4) + \frac{48}{35\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right)$$

$$\mu^{12} = \frac{7\tau_1^2}{60\sqrt{5}} \gamma + \left(\tau_1^2 \tau(4) + \frac{32}{21\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right) \frac{\gamma^2}{100\sqrt{5}}$$

$$\mu^{13} = -\frac{\tau_1^3}{75} \gamma + \frac{4\gamma^2}{1500\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)}$$

$$\mu^{21} = \frac{7\tau_2^1}{60\sqrt{5}} \gamma + \left(\tau_2^1 \tau(4) + \frac{32}{21\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right) \frac{\gamma^2}{100\sqrt{5}}$$

$$\begin{aligned} \mu^{22} = & 1 + \left(\frac{2\tau(0)}{9} + \frac{7\tau_1^1}{300} + \frac{4\tau_3^3}{25} + \frac{6\tau(4)}{70} \right) \gamma + \\ & + \left(\frac{16}{45} \tau(0)\tau_3^3 + \frac{4}{21} \tau(0)\tau(4) + \frac{\tau_1^1\tau(4)}{50} + \frac{32}{945\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right) \frac{\gamma^2}{10} \end{aligned}$$

$$\mu^{23} = \frac{\tau_2^3}{5\sqrt{5}} \gamma + \frac{2\gamma^2}{45\sqrt{5}} \left(\tau(0)\tau_2^3 + \frac{1}{15\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right)$$

$$\mu^{31} = \frac{\tau_3^1}{75} \gamma + \frac{4\gamma^2}{1500\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)}$$

$$\mu^{32} = \frac{\tau_3^2}{5\sqrt{5}} \gamma + \frac{2\gamma^2}{45\sqrt{5}} \left(\tau(0)\tau_3^2 + \frac{1}{15\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right)$$

$$\mu^{33} = 1 + \gamma \left(\frac{2\tau(0)}{9} + \frac{7\tau_1^1}{300} + \frac{7\tau_2^2}{60} \right) + \frac{7\gamma^2}{270} \left(\tau(0)\tau_2^2 + \frac{1}{50\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right) \quad (\text{II-A9})$$

In the equations of motion of the transverse components, the following coefficients are introduced (Δ is defined by II-A8)

$$\Delta X_a^2 = 1 + \frac{\gamma}{70} \left[\tau\left(15, \frac{34}{3}, \frac{23}{60}\right) + 6\tau(4) \right] + \frac{\gamma^2}{30} \left[\tau(4) \tau\left(\frac{1}{7}, \frac{2}{5}, 1\right) + \frac{4}{7\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right]$$

$$\Delta X_b^2 = 1 + \frac{\gamma}{10} \left[\tau\left(2, \frac{15}{7}, 6\right) + \frac{6\tau(4)}{7} \right] + \frac{\gamma^2}{50} \left[\tau(4) \tau\left(\frac{2}{7}, 1, 2\right) + \frac{12}{7\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right]$$

$$\Delta X_a^4 = \gamma \frac{\tau_3^1}{10} - \frac{\gamma^2}{50\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)}$$

(II-A10)

for the source-terms, and

$$\Delta X_{aa}^{22} = 1 + \frac{7Y}{230} \left[\frac{166}{63} \tau(0) + \frac{1}{3} \tau\left(\frac{425}{21}, 14, 50\right) + \frac{14}{5} \tau(4) \right] \\ + \frac{7Y^2}{690} \left[\frac{2}{5} \tau(0) \tau\left(\frac{25}{7}, \frac{1}{3}, 5\right) + \frac{2}{3} \tau(0) \tau(4) + \frac{7}{5} \tau(4) \tau\left(\frac{5}{21}, \frac{4}{5}, 2\right) + \frac{5}{3\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right]$$

$$\Delta X_{ba}^{22} = 1 + \frac{Y}{10} \left[\frac{13}{9} \tau(0) + \frac{5}{3} \tau\left(\frac{4}{3}, \frac{4}{5}, \frac{7}{2}\right) + \frac{4}{5} \tau(4) \right] \\ + \frac{Y^2}{100} \left[\frac{10}{3} \tau(0) \tau\left(1, \frac{1}{5}, 3\right) + \frac{10}{9} \tau(0) \tau(4) + \frac{7\tau(4)}{15} \tau\left(\frac{10}{21}, 2, 5\right) + \frac{5}{3\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right]$$

$$\Delta X_{aa}^{42} = 1 + \frac{7Y}{30} \left[\frac{20}{21} \tau(0) + \tau\left(\frac{55}{21}, 1, 10\right) \right] + \frac{7Y^2}{30} \left[\tau(0) \tau\left(\frac{5}{7}, \frac{1}{3}, 5\right) + \frac{1}{6\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right]$$

$$\Delta X_{ab}^{22} = 1 + \frac{Y}{10} \left[\frac{13}{9} \tau(0) + \frac{2}{3} \tau\left(\frac{10}{3}, 2, 7\right) + \frac{4}{5} \tau(4) \right] \\ + \frac{Y^2}{100} \left[\frac{2}{3} \tau(0) \tau(5, 1, 7) + \frac{10}{9} \tau(0) \tau(4) + \frac{7\tau(4)}{15} \tau\left(\frac{10}{21}, 2, 4\right) + \frac{5}{3\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right]$$

$$\Delta X_{bb}^{22} = 1 + \frac{Y}{10} \left[2\tau(0) + \tau\left(2, \frac{9}{7}, 6\right) + \frac{18}{35} \tau(4) \right] \\ + \frac{Y^2}{100} \left[4\tau(0) \tau\left(1, \frac{3}{7}, 3\right) + \frac{20}{21} \tau(0) \tau(4) + \frac{2}{5} \tau(4) \tau\left(\frac{4}{21}, 1, 2\right) + \frac{6}{7\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right]$$

$$\Delta X_{ab}^{42} = 1 + \frac{Y}{9} \left[2\tau(0) + \tau\left(\frac{13}{10}, \frac{3}{2}, \frac{42}{5}\right) \right] + \frac{Y^2}{30} \left[\tau(0) \tau(1, 1, 7) + \frac{1}{10\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right]$$

$$\Delta X_{aa}^{24} = 1 + \frac{7Y}{30} \left[\frac{20}{21} \tau(0) + \tau\left(\frac{55}{21}, 1, 4\right) \right] + \frac{7Y^2}{30} \left[\tau(0) \tau\left(\frac{5}{7}, \frac{1}{3}, 1\right) + \frac{1}{6\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right]$$

$$\Delta X_{ba}^{24} = 1 + \frac{Y}{9} \left[2\tau(0) + \tau\left(\frac{13}{10}, \frac{3}{2}, \frac{21}{5}\right) \right] + \frac{Y^2}{30} \left[\tau(0) \tau(1, 1, 3) + \frac{1}{10\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right]$$

$$\Delta \chi_{aa}^{44} = 1 + \frac{7\gamma}{150} \left[\frac{100}{21} \tau(0) + \tau\left(\frac{23}{21}, 3, 8\right) \right] + \frac{7\gamma^2}{270} \left[\tau(0) \tau_2^2 + \frac{1}{50\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right]$$

(II-A11)

for the coupling terms.

The equations of motion of the transverse components of the density matrix may be written in a compact shape

$$(\Gamma + i \Omega)\rho = n \Lambda + \chi R \quad (\text{II-A12})$$

if we introduce the 4x4 matrices

$$\Gamma = \begin{pmatrix} \Gamma_a(2) + \frac{5\gamma}{42} & -\left(\frac{2\gamma}{5\sqrt{21}} + \frac{\sqrt{21}}{10} \gamma_{ba}\right) & \frac{\gamma}{35\sqrt{3}} & -\frac{\gamma}{5\sqrt{21}} \\ -\frac{2\gamma}{5\sqrt{21}} & \Gamma_b(2) + \frac{7\gamma}{30} & -\frac{\gamma}{5\sqrt{7}} & \frac{\gamma}{5} \\ \frac{\gamma}{35\sqrt{3}} & -\frac{\gamma}{5\sqrt{7}} & \Gamma_a(4) + \frac{4\gamma}{35} & -\frac{\gamma}{10\sqrt{7}} \\ -\frac{\gamma}{5\sqrt{21}} & \frac{\gamma}{5} & -\frac{\gamma}{10\sqrt{7}} & \Gamma_a(4) + \frac{\gamma}{5} \end{pmatrix} \quad (\text{II-A13})$$

$$\Omega = 2 \begin{pmatrix} \omega_a & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \omega_b & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \omega_a & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2\omega_a \end{pmatrix} \quad (\text{II-A14})$$

$$X = Y \begin{pmatrix} \frac{23}{210} (1 - X_{aa}^{22}) & -\frac{1}{5\sqrt{21}} (1 - X_{ba}^{22}) & \frac{1}{70\sqrt{3}} (1 - X_{aa}^{42}) & 0 \\ -\frac{1}{5\sqrt{21}} (1 - X_{ab}^{22}) & \frac{1}{30} (1 - X_{bb}^{22}) & -\frac{1}{10\sqrt{7}} (1 - X_{ab}^{42}) & 0 \\ \frac{1}{70\sqrt{3}} (1 - X_{aa}^{24}) & -\frac{1}{10\sqrt{7}} (1 - X_{ba}^{24}) & \frac{3}{28} (1 - X_{aa}^{44}) & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

(II-A15)

and the column-vectors

$$\Lambda = \frac{Y}{30} X \begin{pmatrix} -\sqrt{21} X_a^2 \\ X_b^2 \\ \frac{2}{\sqrt{7}} X_a^4 \\ 0 \end{pmatrix}$$

(II-A16)

$$\rho = \begin{pmatrix} a \rho_2^2 \\ b \rho_2^2 \\ a \rho_4^4 \\ a \rho_4^4 \end{pmatrix}$$

(II-A17)

R is the real part of ρ .

The following coefficients are used in the saturation resonances of the populations

$$\xi^0 = \mu^{11} \quad ; \quad \xi_a^{40} = \mu^{13}$$

$$\xi_b^{20} = 1 + \frac{\gamma}{10} \left[\tau\left(2, \frac{15}{7}, 3\right) + \frac{6}{7} \tau(4) \right] + \frac{\gamma^2}{100} \left[\tau\left(\frac{4}{7}, 2, 6\right) \tau(4) + \frac{24}{7\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right]$$

$$\xi_a^{20} = 1 + \frac{\gamma}{10} \left[\tau\left(\frac{15}{7}, \frac{34}{21}, 6\right) + \frac{6}{7} \tau(4) \right] + \frac{\gamma^2}{100} \left[\tau\left(\frac{10}{21}, \frac{4}{3}, 4\right) \tau(4) + \frac{40}{21\Gamma_a(2)\Gamma_b(2)} \right]$$

(II-A18)

$$\xi_b^{22} = 1 - \frac{3\gamma}{70} \left(\frac{9}{\Gamma_a(2)} - \frac{2}{\Gamma_a(4)} \right) - \frac{\gamma^2}{50\Gamma_a(2)\Gamma_a(4)}$$

$$\xi_{bb}^{22} = 1 + \frac{\gamma}{10} \left[2\tau(0) + \frac{3}{\Gamma_a(2)} - \frac{6}{5\Gamma_a(4)} \right] + \frac{\gamma^2}{10} \left[\frac{24\tau(0)}{35\Gamma_a(2)} - \frac{2\tau(0)}{7\Gamma_a(4)} - \frac{2}{50\Gamma_a(2)\Gamma_a(4)} \right]$$

$$\xi_{ab}^{22} = 1 + \frac{\gamma}{10} \left[3\tau(0) + \frac{1}{3\Gamma_a(2)} + \frac{6}{5\Gamma_a(4)} \right] + \frac{\gamma^2}{10} \left[-\frac{4\tau(0)}{15\Gamma_a(2)} + \frac{\tau(0)}{3\Gamma_a(4)} + \frac{7}{75\Gamma_a(2)\Gamma_a(4)} \right]$$

$$\xi_{ab}^{42} = 1 + \frac{\gamma}{9} \left[2\tau(0) + \frac{11}{10\Gamma_a(2)} \right] + \frac{\gamma^2}{45} \frac{\tau(0)}{\Gamma_a(2)}$$

(II-A19)

and

$$\xi_a^{22} = 1 - \frac{\gamma_{ba}}{10\Gamma_b(2)} + \frac{\gamma}{70} \left[\frac{13}{\Gamma_b(2)} + \frac{6}{\Gamma_a(4)} \left(1 - \frac{\gamma_{ba}}{10\Gamma_b(2)} \right) \right] + \frac{\gamma^2}{350\Gamma_b(2)\Gamma_a(4)}$$

$$\xi_{ba}^{22} = 1 + \frac{7\gamma_{ba}}{20\Gamma_b(2)} + \frac{\gamma}{10} \left[3\tau(0) \left(1 + \frac{7\gamma_{ba}}{30\Gamma_b(2)} \right) + \frac{3}{\Gamma_b(2)} + \frac{6}{5\Gamma_a(4)} \left(1 - \frac{7\gamma_{ba}}{20\Gamma_b(2)} \right) \right] + \frac{\gamma^2}{10} \left[\frac{4\tau(0)}{5\Gamma_b(2)} + \frac{\tau(0)}{3\Gamma_a(4)} \left(1 - \frac{3\gamma_{ba}}{10\Gamma_b(2)} \right) - \frac{1}{75\Gamma_a(4)\Gamma_b(2)} \right]$$

$$\xi_{aa}^{22} = 1 - \frac{7\gamma_{ba}}{15\Gamma_b(2)} + \frac{\gamma}{30} \left[-\frac{158}{9} \tau(0) \left(1 - \frac{189\gamma_{ba}}{790\Gamma_b(2)} \right) + \frac{25}{9\Gamma_b(2)} + \frac{14}{5\Gamma_a(4)} \left(1 - \frac{3\gamma_{ba}}{5\Gamma_b(2)} \right) \right] + \frac{\gamma^2}{90} \left[\frac{8\tau(0)}{\Gamma_b(2)} + \frac{14\tau(0)}{3\Gamma_a(4)} \left(1 - \frac{3\gamma_{ba}}{10\Gamma_b(2)} \right) - \frac{7}{15\Gamma_b(2)\Gamma_a(4)} \right]$$

$$\xi_{aa}^{42} = 1 - \frac{21\gamma_{ba}}{10\Gamma_b(2)} + \frac{\gamma}{9} \left[2\tau(0) \left(1 - \frac{21\gamma_{ba}}{10\Gamma_b(2)} \right) - \frac{29}{10\Gamma_b(2)} \right] - \frac{\gamma^2}{15} \frac{\tau(0)}{\Gamma_b(2)} \quad (\text{II-A20})$$

Two relaxation times model .

For the two relaxation times model, the matrix of the χ coefficients is symmetrical

$$\chi_{\alpha\beta}^{kk''} = \chi_{\beta\alpha}^{k''k} \quad (\text{II-A21})$$

We use the following coefficients for the study of the Zeeman coherence

$$\begin{aligned} \chi_a &= \chi_a^2 + \frac{4}{21} \chi_a^4 & \chi_a^4 &= \left[1 + \frac{\gamma}{10} \left(\frac{2}{\gamma_b} + \frac{1}{\gamma_a} \right) \right]^{-1} \\ \chi_a' &= \chi_a^2 - \frac{\chi_a^4}{7} & &= \frac{1}{\Delta'} \left(1 + \frac{2\gamma}{15\gamma_a} \right) \\ \chi_b^2 &= \frac{1}{\Delta'} \left(1 + \frac{\gamma}{5\gamma_a} \right) \\ \chi_{aa}' &= \frac{46\chi_{aa}^{22} + 3\chi_{aa}^{24}}{49} & &= \frac{1}{\Delta'} \left[1 + \frac{\gamma}{210} \left(\frac{25}{\gamma_b} + \frac{38}{\gamma_a} \right) \right] \end{aligned}$$

$$\chi_{ab} = \chi_{ab}^{22} = \chi_{ab}^{42} = \frac{1}{\Delta'} \left[1 + \frac{\gamma}{30} \left(\frac{5}{\gamma_b} + \frac{6}{\gamma_a} \right) \right]$$

$$\chi_{bb}^{22} = \frac{1}{\Delta'} \left[1 + \frac{\gamma}{5} \left(\frac{1}{\gamma_b} + \frac{1}{\gamma_a} \right) \right] \quad (\text{II-A22})$$

where

$$\Delta' = 1 + \frac{\gamma}{30} \left(\frac{7}{\gamma_b} + \frac{8}{\gamma_a} \right) + \frac{\gamma^2}{150\gamma_a} \left(\frac{3}{\gamma_b} + \frac{2}{\gamma_a} \right) \quad (\text{II-A23})$$

Coefficients ξ (eq II-A20) verify the following relations.

$$\xi_b^{20} = \xi_{bb}^{22}$$

and

$$\frac{10\xi_a^0 - \xi_b^2}{9} = \frac{7\xi_a^{20} + 2\xi_{ab}^{22}}{9} = \xi_{ab}^{42} - \frac{5}{6} \xi_a^{40} = \Delta' \quad (\text{II-A24})$$

References and Footnotes

- (1) M. DUCLOY "Nonlinear effects in optical pumping of atoms by a high intensity multimode gas laser. I. General theory " to be published in the Physical Review A, September 1973.
- (2) W.R. BENNETT Jr, Phys. Rev. (1962), 126 , 580.
- (3) Let us point out that if either J_a and J_b are equal or the $b \rightarrow a$ spontaneous emission is negligible ($\gamma_{ba} = 0$), the M_0 matrix is symmetrical.
- (4) In I, we have considered a σ_y polarization. Transposing O_x and O_y can be made by changing ρ_Q^k into $(-)^{Q/2} \rho_Q^k$.
- (5) M. ROTENBERG, R. BIVINS, N. METROPOLIS and J.K. WOOTEN, Jr "The 3-j and 6-j symbols", Crosby Lockwood and Son Ltd, London (1959)
- (6) A.R. EDMONDS, "Angular Momentum in Quantum Mechanics", Princeton University Press, Princeton (1957)
- (7) B. DECOMPS and M. DUMONT, J. de Phys. (1968), 29 , 443.
- (8) B. DECOMPS and M. DUMONT, I.E.E.E. J. of Quant. Electronics (1968), QE4 , 916.
- (9) M. DUCLOY, Opt Commun. (1971) , 3 , 205.
- (10) F. BLOCH and A. SIEGERT, Phys. Rev. (1940), 57 , 522.
- (11) When γ is lower than $\gamma_0 = \frac{3\Gamma_b(2)}{\eta + 1}$, \mathcal{Y} can be expressed as an infinite series
- $$\mathcal{Y} = \frac{1}{\eta + 1} \sum_{p=0}^{\infty} (-)^p \left(\frac{\gamma}{\gamma_0}\right)^{p+1}$$
- As a matter of fact, this expression gives the result of the usual perturbation theory, when BLA is valid. Then the perturbation development is convergent if $\gamma < \gamma_0$ only. In the case of the 1.52μ neon line (see figure 1), $\gamma_0 = 5.7$ MHz . We shall see, in a forthcoming publication, that the experiments have shown that γ can be as high as 80 Megahertz. This explains the importance of theories based on non-perturbative methods.
- (12) M. DUCLOY, E. GIACOBINO-FOURNIER and B. DECOMPS, J. de Phys. (1970) 31 , 533.
- (13) J. DATCHARY and M. DUCLOY, Compt. Rend. (1972), 274B, 337 .

- (14) J. DATCHARY, Thèse de Troisième Cycle, University of Paris (1972)
J. DATCHARY and M. DUCLOY, to be published.
- (15) M. DUMONT and B. DECOMPS, J. de Phys. (1968), 29, 181.
- (16) In this section, numerical applications of the theory will be performed using the following values of the relaxation rates (in MHz) :
 $\Gamma_a(0) = 9.8$, $\Gamma_a(2) = \Gamma_a(4) = 14.5$, $\Gamma_b(0) = 2.75$, $\Gamma_b(2) = 5.75$ and
 $\gamma_{ba} = 0.5$. The Landé factors are $g_a = 1.299$ and $g_b = 1.293$. This nearly corresponds to the experimental conditions of the 6328 Å neon laser line (transition $3s_2 - 2p_4$), when the neon pressure is equal to 1.5 torrs
 [7] [8]
- (17) B. DECOMPS, Thesis, University of Paris , 1969.
- (18) The Principal difficulty of this measurement consists in the determination of the correspondence between the experimentally measured laser intensity and the pumping rate, γ . The best way seems to lie in the analysis of the power-broadening of the a Hanle effect (see figure 7 and [21])
- (19) However, in zero field, the density matrix may be obtained with the help of equations II-72-74, and has a simple analytic shape. It is possible to verify that equations II-72-74 provide the solution of equations II-77, but the calculation, which is very complicated, will not be reproduced here.
- (20) $\epsilon = - 0.10$ when $\gamma = 100$ MHz. The contribution of the $a\rho_2^4$ coupling is weak in comparison with that of $a\rho_2^2$, but this is not negligible relatively to the direct excitation χ_b^2 .
- (21) The power-broadening of the Hanle effect of the a level is not very dependent on the various relaxation rates of the levels. Subsequently the analysis of this power-broadening is particularly well convenient for the determination of the pumping rate, γ . This is the reason why it is very important to have the exact theoretical variations of the width with the pumping rate. These remarks are also valid for the $J=1 - J=0$ and $J=1 - J=1$ transitions.
- (22) M. DUCLOY, M.P. GORZA and B. DECOMPS, Optics Commun. (1973), 8, 21.

(23) M.P. GORZA, B. DECOMPS and M. DUCLOY, Opt. Commun. to be published
Parameter δ , which is introduced in this reference, is connected
to the pumping rate by the relation $\gamma=30\delta$

(24) In the experimental study of the 6328 Å neon line, B. DECOMPS and
M. DUMONT [7] have introduced the dimension-less quantity, $F(a,f,f')=$
 $= L_{af}^{\pi} / L_{af'}^{\pi}$, which is the ratio of the intensities of two different
fluorescent lines emitted from the same level. Particularly, B. DECOMPS
et al. have studied the variations of $F(a,2,1)$ with the laser inten-
sity

$$F(a,2,1) = \frac{\sqrt{10} a \rho_0^0 + \sqrt{7} a \rho_0^2}{\sqrt{10} a \rho_0^0 - \sqrt{7} a \rho_0^2}$$

In zero magnetic field, $a \rho_0^0$ and $a \rho_0^2$ are nearly proportional (equa-
tions II-72-74). As it is for the the zero-field anisotropy of the fluores-
cence of level a, $F(H=0)$ is practically independent of the laser inten-
sity. In strong field ($\omega_{\beta} \gg \Gamma_{\beta}(k)$), II-95 imply

$$\frac{a \rho_0^2}{a \rho_0^0} = \frac{\sqrt{7}}{2 \sqrt{10}} \times \frac{\Gamma_a^*(0)}{\Gamma_a(2)} \times \frac{\xi_a^2}{\xi^0}$$

The numerical application shows that $F(H \infty)$ decreases with increasing
laser intensities. These results are in qualitative agreement with
the experiments (figure 3 of ref [7])

(25) In the case of the 6328 Å neon line, where the Landé factors are
nearly equal, all the results obtained in weak field can be extended
to the strong field phenomena, when the laser modes are phase-locked
(see section IV-B 2 of article I and, in particular, the equations
I-83-84). The lateral saturation resonances of the π fluorescence have
the same shape as the zero-field saturation resonance. Subsequently
for the leading part, they must be ascribed to the Zeeman coherence
of the $J_a=2$ level ($2p_4$, in the case of 6328 Å), whether the fluores-
cent line is issued from level a or from level b. This result, valid
at arbitrary laser intensities, have been shown by M. DUMONT [26] for
the fourth order theoretical calculation, and have been experimentally
verified very well (see figure 7 of [26]). FORK, HARGROVE and POLLACK,

who had observed these lateral resonances (Phys. Rev. Lett (1964), 12 705) had erroneously ascribed them to the $J_b=1$ level (here, $3s_2$ of neon). They had deduced this from the fact that they did not observe these resonances on the $2p_4 - 1s_5$ fluorescence line ($J_a=2 \rightarrow J_f=2$). Indeed, their experimental conditions must have nearly corresponded to the zero point of \mathcal{Y}_{a2} , in figure 13.

- {26} M. DUMONT, J. de Phys. (1972), 33 , 971.
- {27} J.Z. KLOSE, Phys. Rev. (1966), 141 ,181 .
W.R. BENNETT and P.J. KINDLMANN, Phys. Rev. (1966), 149 ,38.

Figures Captions

- Figure 1 : Power-broadening of the b Hanle effect for a $J_b=1 - J_a=0$ laser transition- Continuous curve : exact power-broadening, $\gamma_b^I(2) - \Gamma_b(2)$. Dashed line: fourth order broadening, $\frac{\gamma}{3}$. The relaxation rates are, in MHz, $\Gamma_a(0) = 9$, $\Gamma_b(0) = 3.7$ and $\Gamma_b(2) = 11$. This approximately corresponds to one torr of neon for the $2s_2 - 2p_1$ neon transition ($\lambda = 1.52\mu$)
- Figure 2 : Diagram of a $J=1-J=1$ transition
- Figure 3 : Laser-induced couplings between the alignments of a $J_b=1-J_a=1$ transition. The relaxation rates are, in MHz, $\Gamma_a(0) = 8.4$, $\Gamma_a(2) = 10.1$, $\Gamma_b(0) = 4.4$, $\Gamma_b(2) = 6.6$ and $\gamma_{ba} = 0.2$. This approximately corresponds to one torr of a 10% - 90% neon-helium mixture, for the $3s_2-2p_2$ neon transition ($\lambda = 6401 \text{ \AA}$)
- Figure 4 : Difference between the Hanle effects widths for a $J_b=1-J_a=1$ transition. Continuous curve : $\Gamma_a^I(2) - \Gamma_b^I(2)$. Dashed curve : $\gamma_a^I(2) - \gamma_b^I(2)$ (Experimental conditions of figure 3 with, in addition, $g_a = g_b$)
- Figure 5 : Zero-field anisotropy ratios of the fluorescent lines from the a level, as functions of the pumping rate. ($J_b=1-J_a=2$ laser transition. Experimental conditions of note [16])
- Figure 6 : Alignment to population ratio for the b level in zero magnetic field ($J_b=1 - J_a=2$ transition. Experimental conditions of note [16])
- Figure 7 : Power-broadening of the a Hanle effect ($J_b=1-J_a=2$ transition. Experimental conditions of note [16]). Continuous curve : approximate solution $\gamma_a^I(2)$ (coupling-free Hanle effect). Dashed curve : exact computer calculation.

- Figure 8 : Diagram of a $J=1 - J=2$ transition, with the relative transition probabilities.
- Figure 9 : Variations with the magnetic field of the real part of the hexadecapole moment induced by the laser in the a level ($J_b=1 - J_a=2$ transition. Experimental conditions of note [16]. Pumping rate $\gamma = 100$ MHz). Continuous curve : approximate solution. Dashed curve: exact computer solution.
- Figure 10 : Hanle effect of level b, in the same conditions as those of figure 9. Continuous curve : approximate solution. Dashed curve : exact solution.
- Figure 11 : Shape of the b Hanle effect, for different values of the pumping rate ($J_b=1 - J_a=2$ transition. Conditions of note [16]). The vertical scale is the same for the different curves. The zero-field alignment of b, $\rho_2^2(0)$, is maximum for $\gamma = 13.2$ MHz, and vanishes at high laser intensities (see figure 6). This explains why the Hanle effect amplitude decreases with increasing γ .
- Figure 12 : Amplitude of the saturation resonance on the $J_a=2 \rightarrow J_f=1$ fluorescent line for a $J_b=1 - J_a=2$ laser transition (conditions of note [16]). The continuous curve gives the total amplitude. The dashed curves represent the relative contributions of $a\rho_2^2$ (curve 1), $a\rho_2^4$ (curve 2) and $b\rho_2^2$ (curve 3).
- Figure 13 : Amplitude of the saturation resonance on the $J_a=2 \rightarrow J_f=2$ fluorescent line (same notations as those of figure 12).
- Figure 14 : Amplitude of the saturation resonance on the fluorescence from level b. (conditions of note [16])
- Figure 15 : Amplitude of the saturation resonance on the $J_a=2 \rightarrow J_f=2$ fluorescent line, for various ratios of the relaxation rates. ($J_b=1 - J_a=2$ transition . Model with two relaxation rates, γ_a and γ_b).

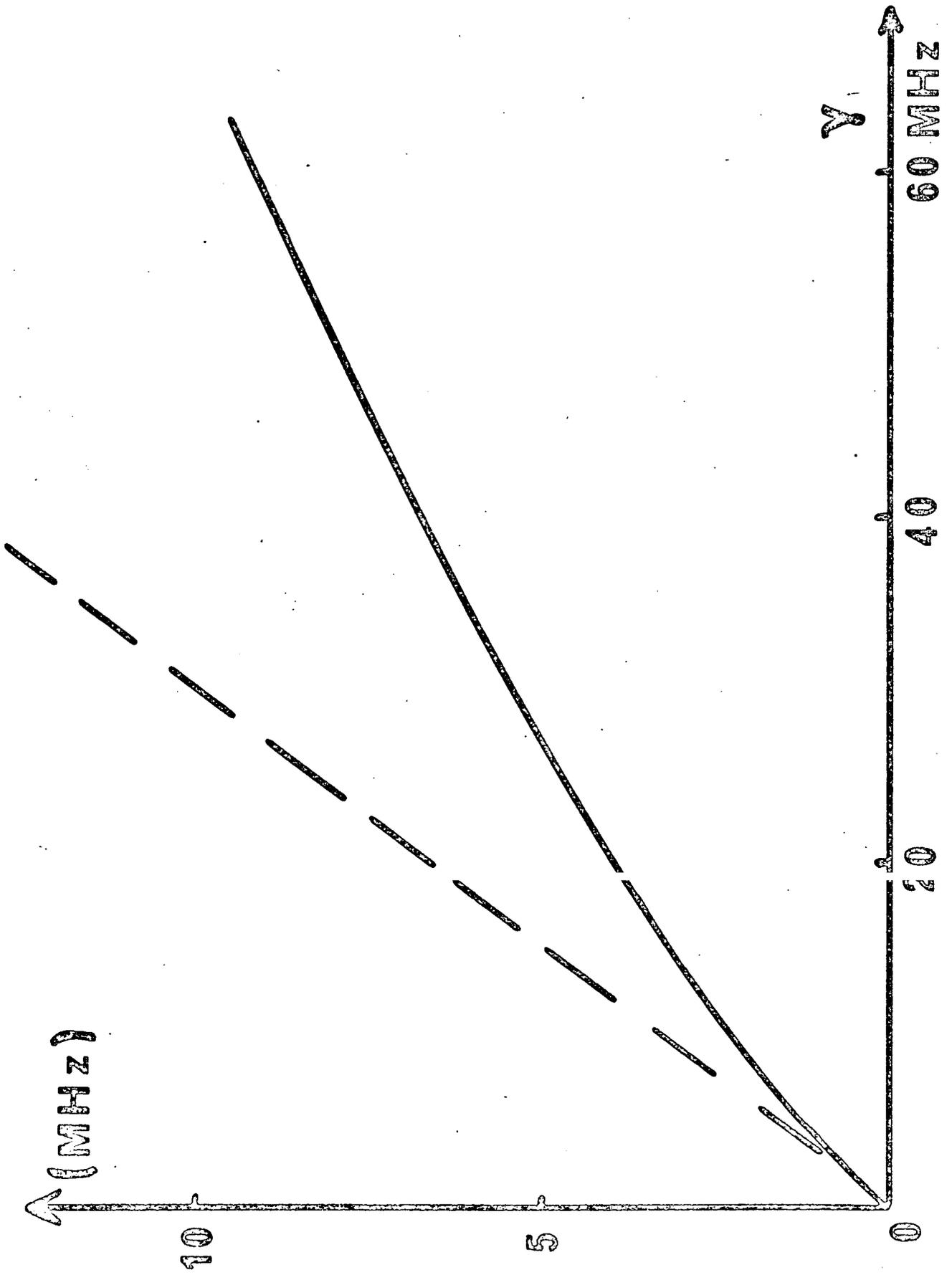


Figure 1

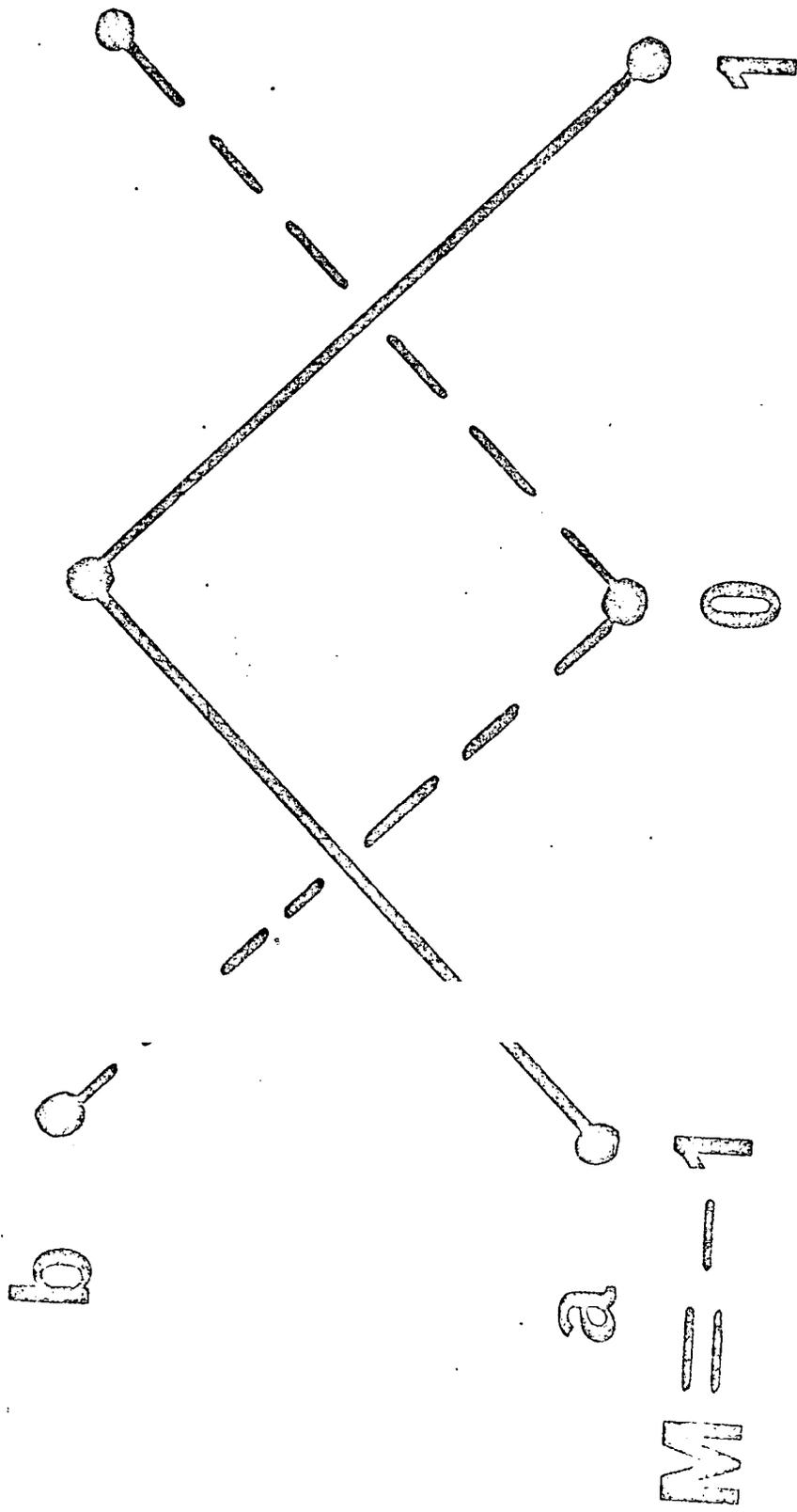


Figure 2

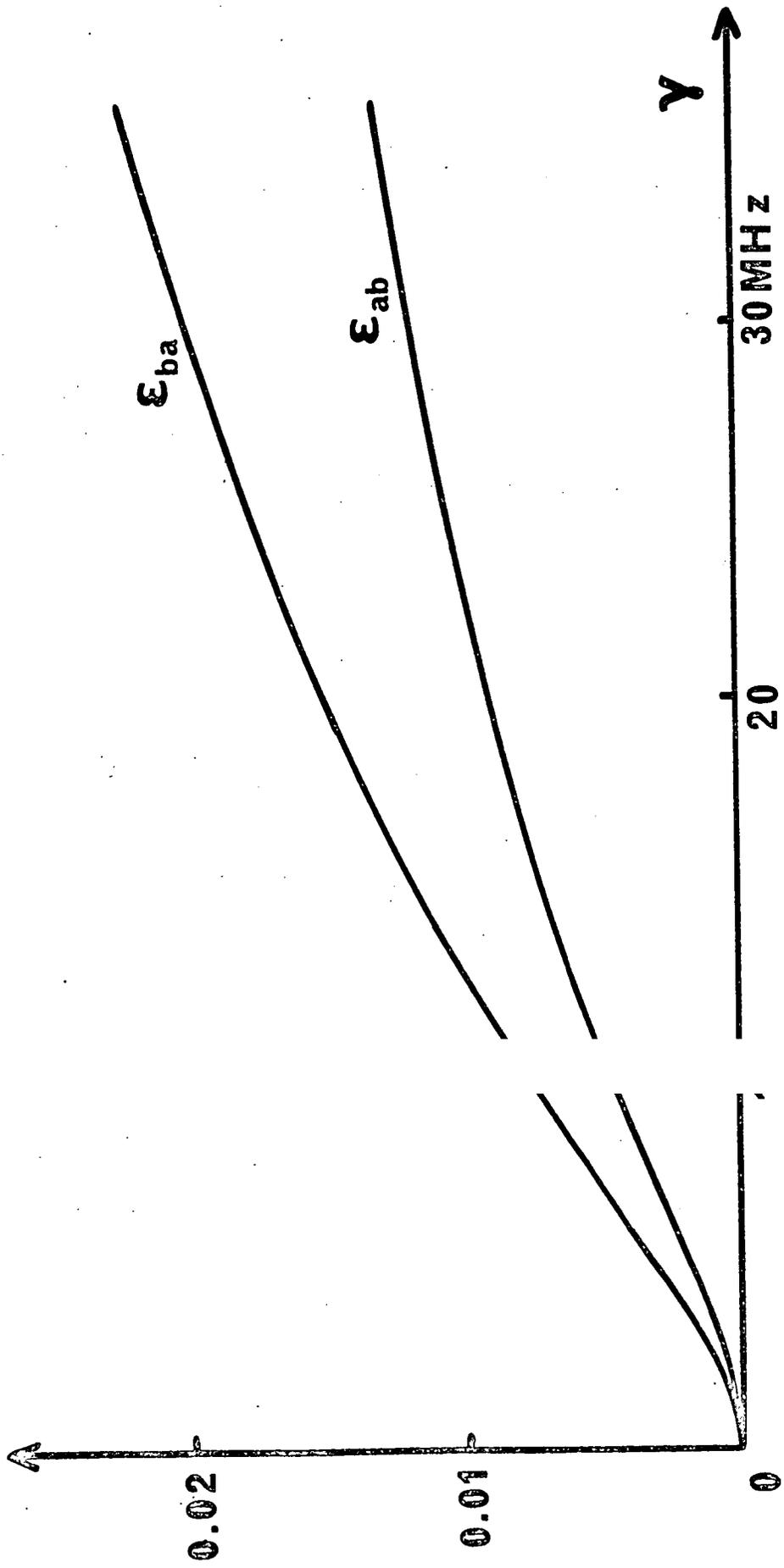


Figure 3

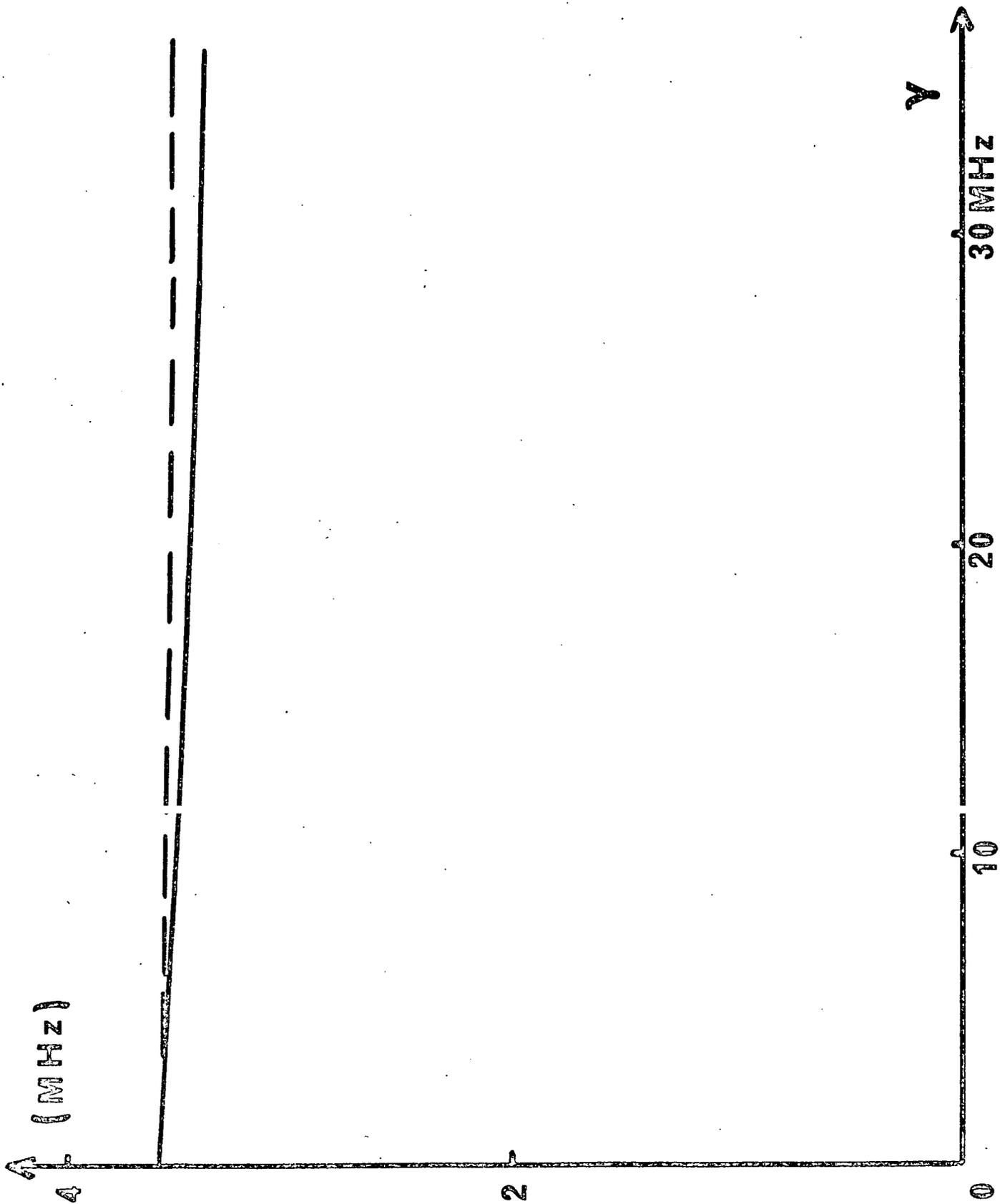


Figure 4

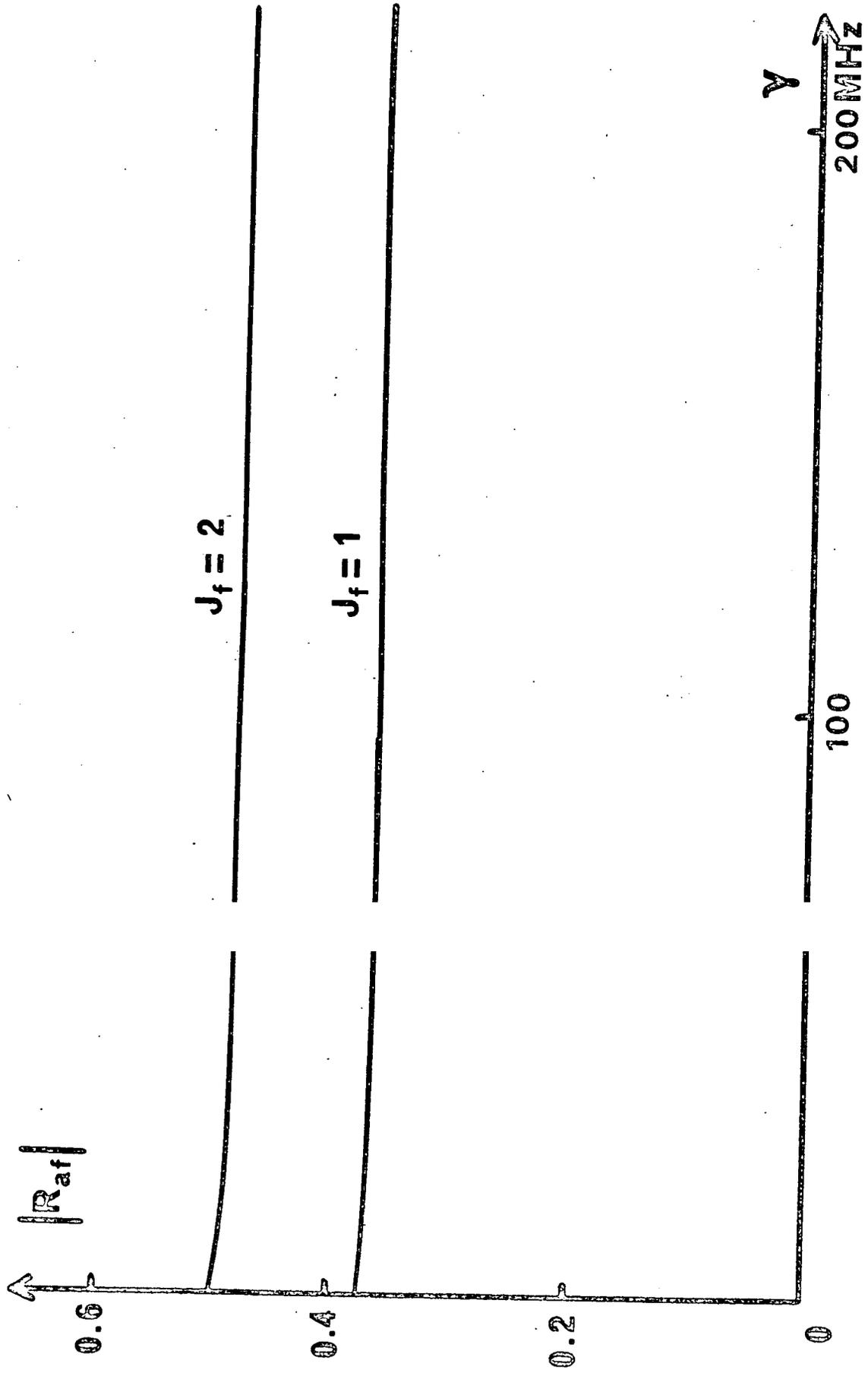


Figure 5

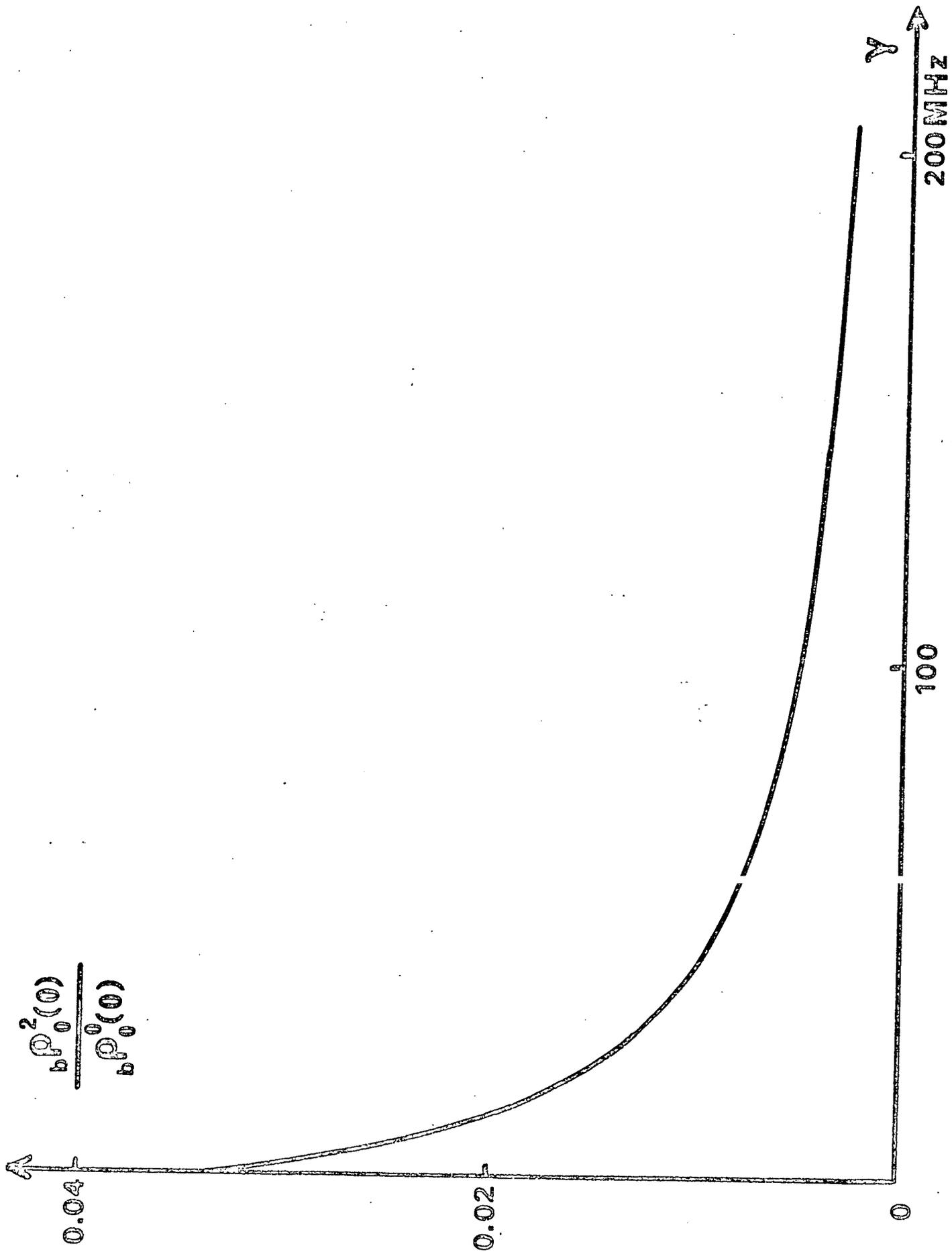


Figure 6

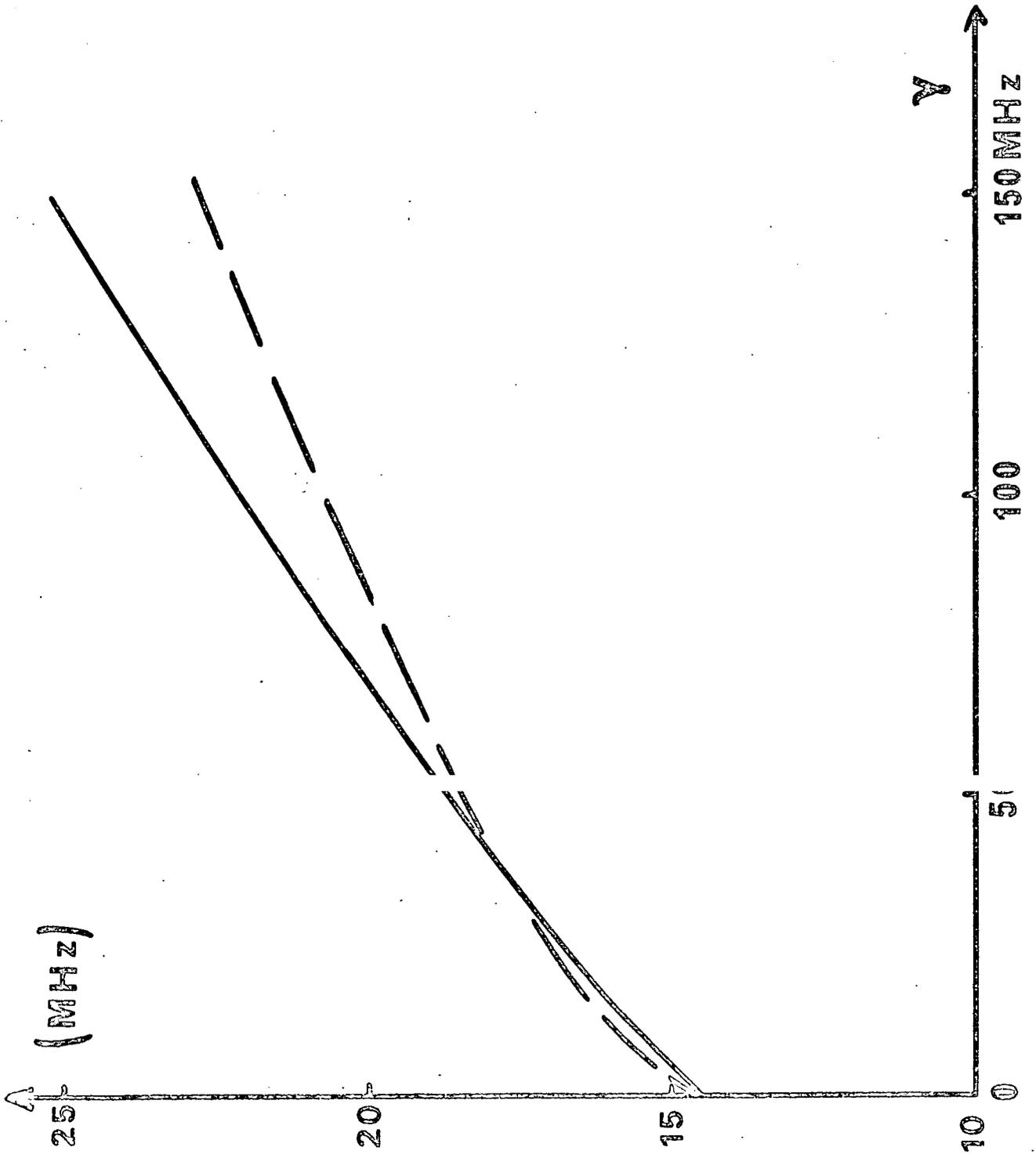


Figure 7

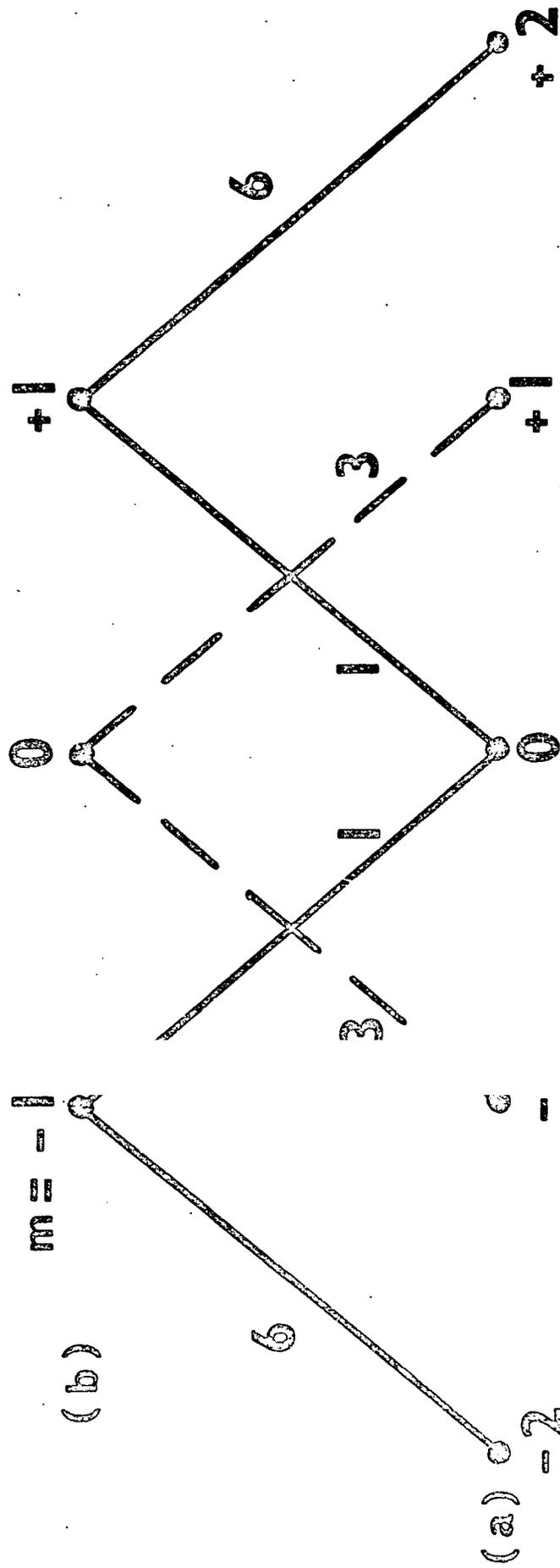


Figure 8

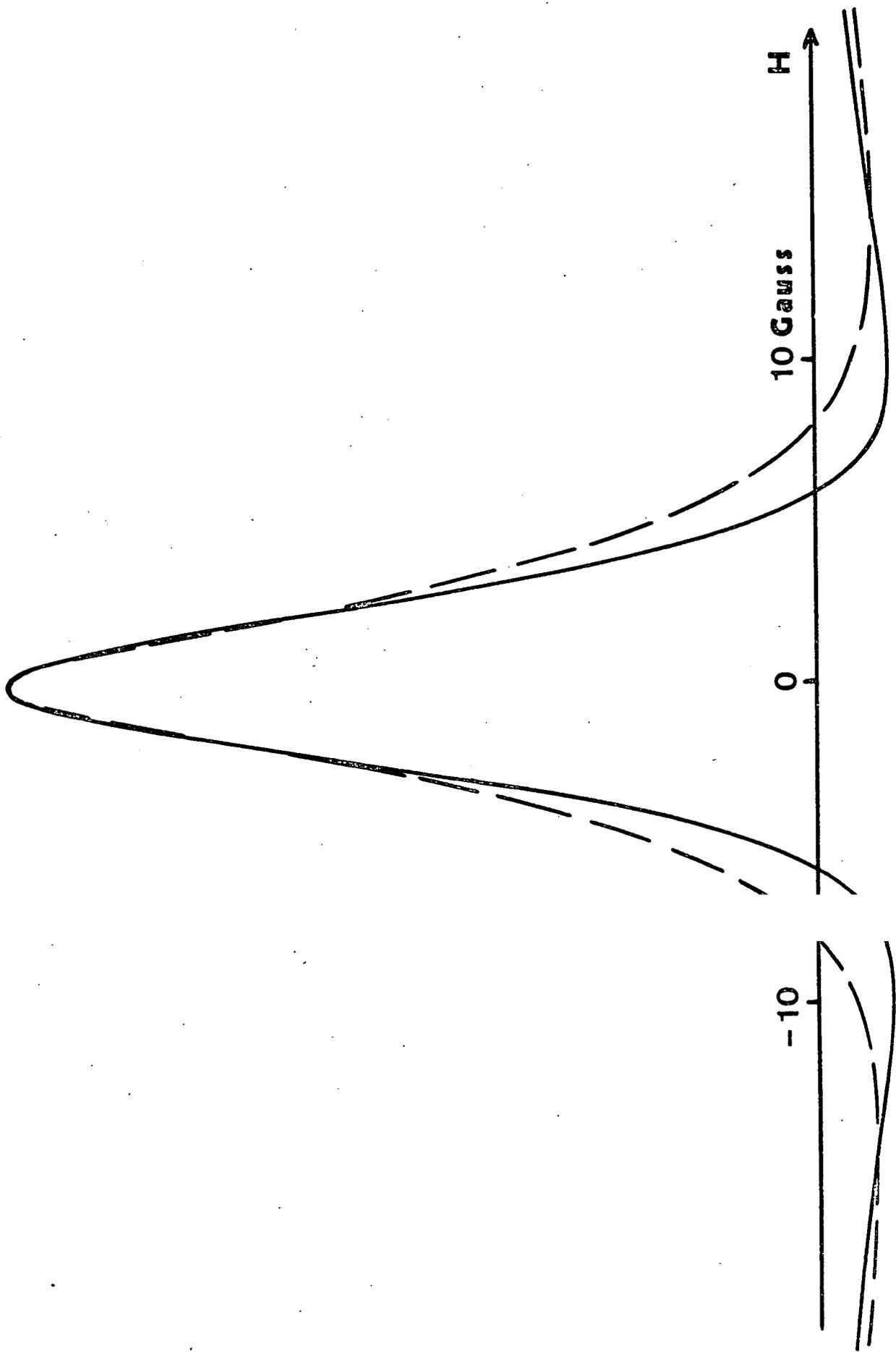


Figure 9

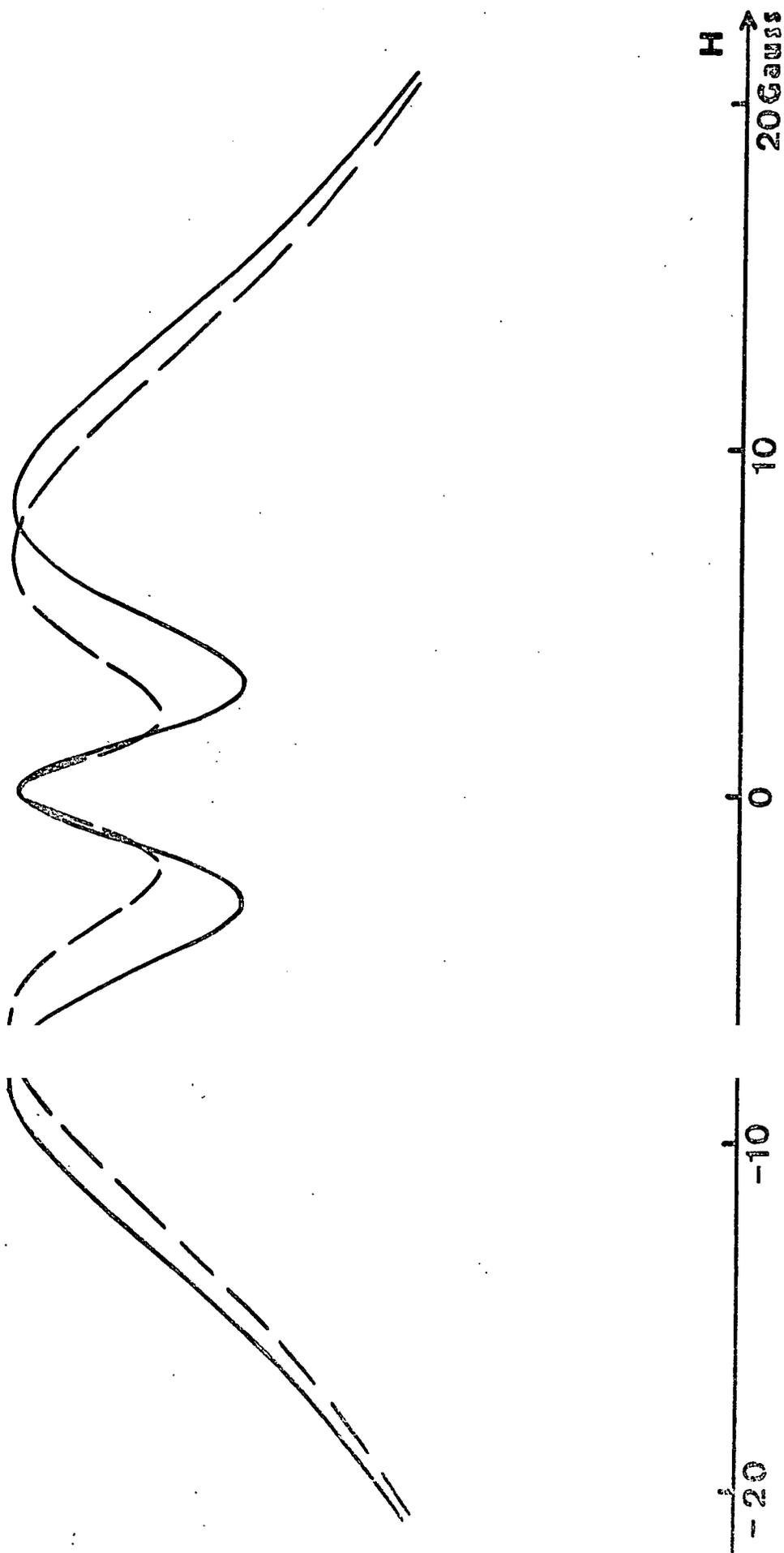


Figure 10

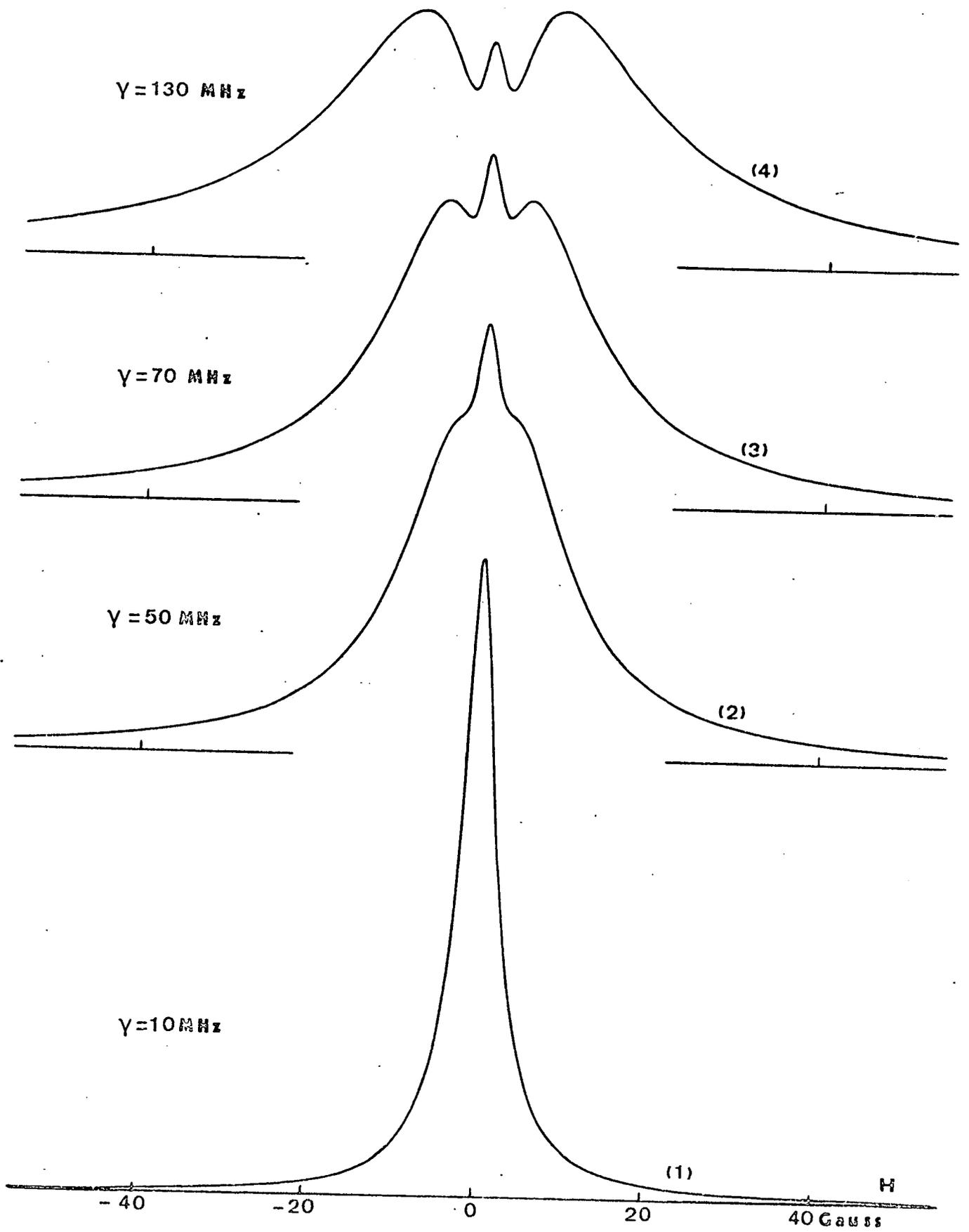


Figure 11

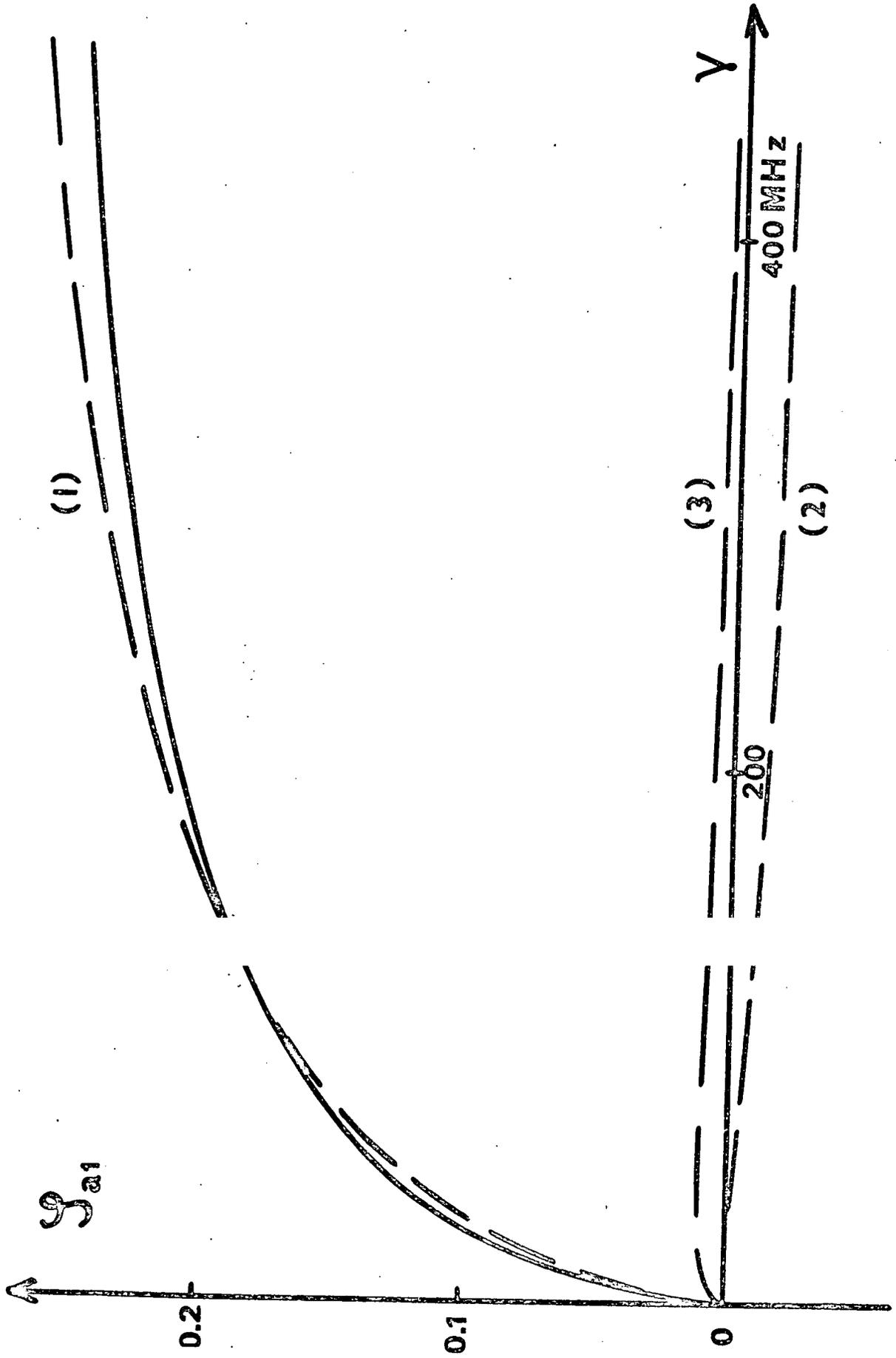


Figure 12

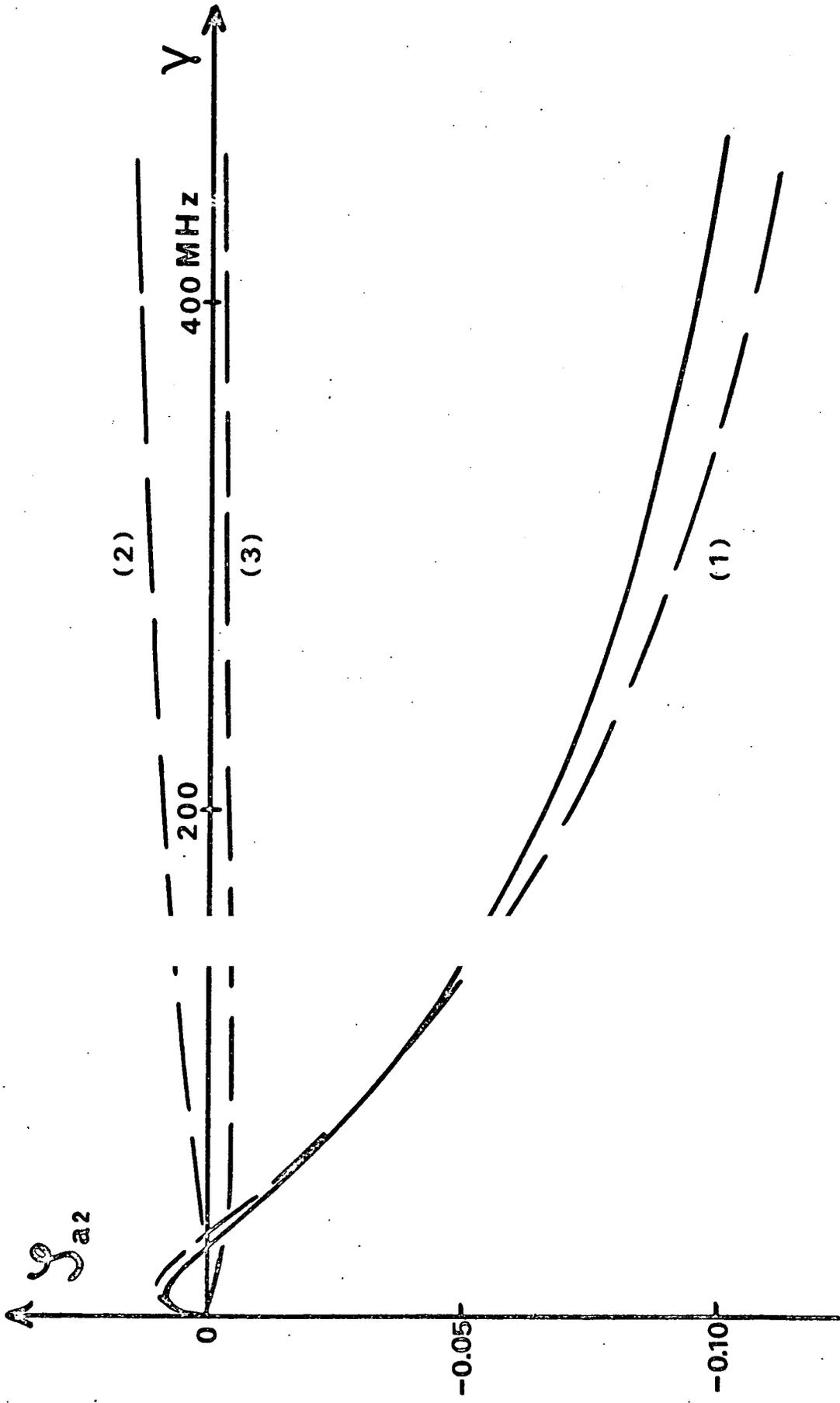


Figure 13

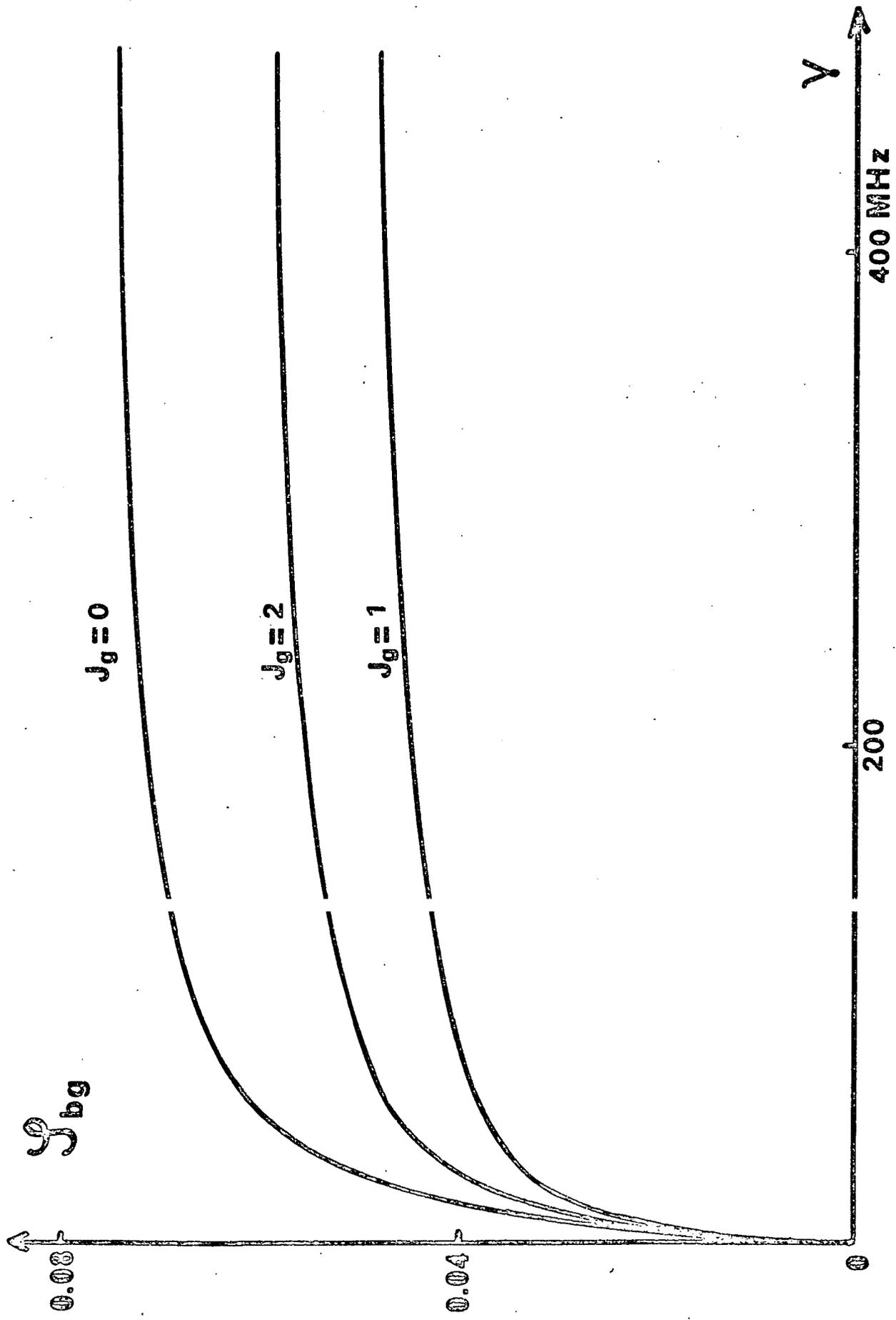


Figure 14

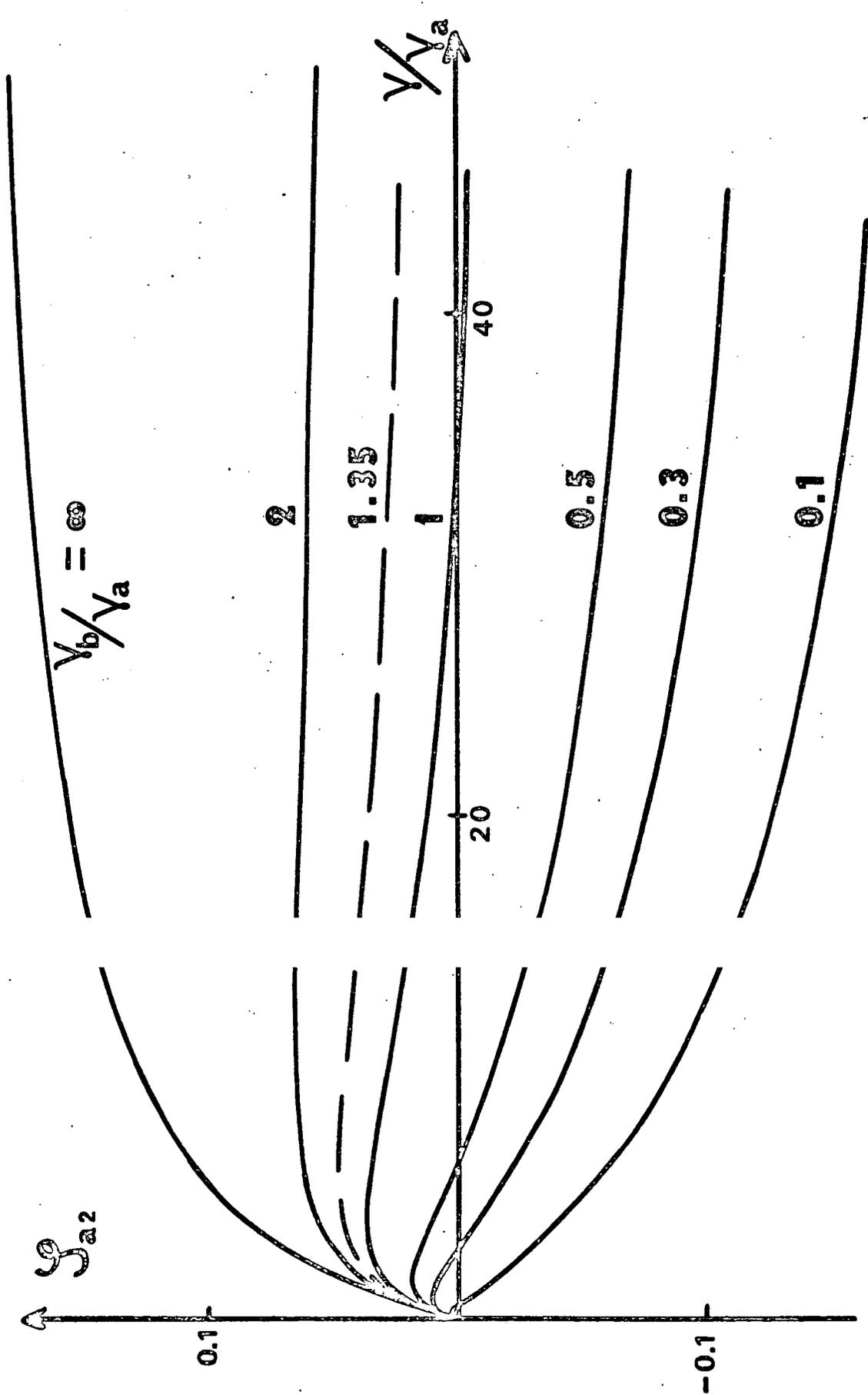


Figure 15

= B = ETUDE EXPERIMENTALE DE LA REPONSE NON-LINEAIRE
D'ATOMES DE NEON A DIFFERENTES IRRADIATIONS LASER =

PLAN DE LA PARTIE EXPERIMENTALE

I - INTRODUCTION

I.1 Le montage expérimental	p. 1
I.2 Avantages et inconvénients du montage expérimental	3
I.3 But des expériences	4
I.4 Définition des observables "significatives"	5

II - TRANSITIONS $J=1 - J=0$ 13

II.1 <u>Transition $2s_2-2p_1$ ($\lambda = 1,52 \mu$)</u>	13
II.1.a. Formes de raie de l'effet Hanle et de la résonance de saturation	13
II.1.b. Elargissement radiatif de l'effet Hanle et amplitude de la résonance de saturation	15
II.1.c. Relaxation de l'alignement du niveau $2s_2$	17
II.1.d. Relaxation de la population du niveau $2p_1$	18
II.1.e. Taux de pompage de la raie $\lambda = 1,52 \mu$	19
II.2 <u>Transition $3s_2-2p_1$ ($\lambda = 7305 \text{ \AA}$)</u>	20
II.2.a. Taux de pompage de la raie $\lambda = 7305 \text{ \AA}$	22
II.2.b. Etude de la relaxation du niveau $3s_2$	25
II.2.c. Etude de l'emprisonnement de la raie de résonance $\lambda_0 = 600 \text{ \AA}$ ($3s_2 \rightarrow 1p_0$)	29
II.2.d. Comparaison avec les mesures de DUMONT sur l'orientation du niveau $3s_2$	32
II.3 <u>Conclusion</u>	33

III - TRANSITION $J=1 - J=1 : 3s_2-2p_2$ ($\lambda = 6401 \text{ \AA}$) 35

III.1 <u>Effets Hanle des niveaux $3s_2$ et $2p_2$</u>	36
III.1.a. Formes de raie	36
III.1.b. Elargissement radiatif	38
III.2 <u>Taux de pompage de la raie $\lambda = 6401 \text{ \AA}$</u>	38
III.3 <u>Résonances de saturation des niveaux $3s_2$ et $2p_2$</u>	39
III.4 <u>Variation de l'intensité des raies de fluorescence : mise en évidence du moment quadrupolaire optique induit par l'irradiation laser sur la transition $3s_2-2p_2$</u>	42
III.5 <u>Conclusion</u>	44

IV - TRANSITIONS $J=1 - J=2$ 45

IV.1 <u>Etude de la grandeur $F(a,2,1)$ sur la fluorescence π du niveau $2p_4$</u>	46
IV.2 <u>Taux d'anisotropie de la fluorescence du niveau $2p_4$</u>	48
IV.3 <u>Effet Hanle du niveau $2p_4$</u>	49
IV.4 <u>Forme de raie de l'effet Hanle du niveau $3s_2$: mise en évidence du moment hexadécapolaire induit par le laser dans le niveau $2p_4$</u>	50

IV.4.a.	Création d'un moment hexadécapolaire dans le niveau a	p.50
IV.4.b.	Couplage du moment hexadécapolaire avec l'alignement du niveau b	51
IV.4.c.	Couplage des alignements de a et b	51
IV.4.d.	Calcul théorique de la forme de raie de l'effet Hanle de b	52
IV.4.e.	Effet Hanle du niveau $3s_2$	53
IV.5	<u>Taux d'anisotropie de la fluorescence du niveau $3s_2$: possibilité de mesure du temps de relaxation hexadécapolaire du niveau $2p_4$</u>	54
IV.6	<u>Résonance de saturation sur la fluorescence π</u>	56
IV.6.a.	Forme de raie de la résonance de saturation	56
IV.6.b.	Anomalie de saturation observée sur la raie de fluorescence $\lambda = 5944 \text{ \AA}$ ($2p_4 \rightarrow 1s_5$)	57
CONCLUSION GENERALE		58

I - INTRODUCTION

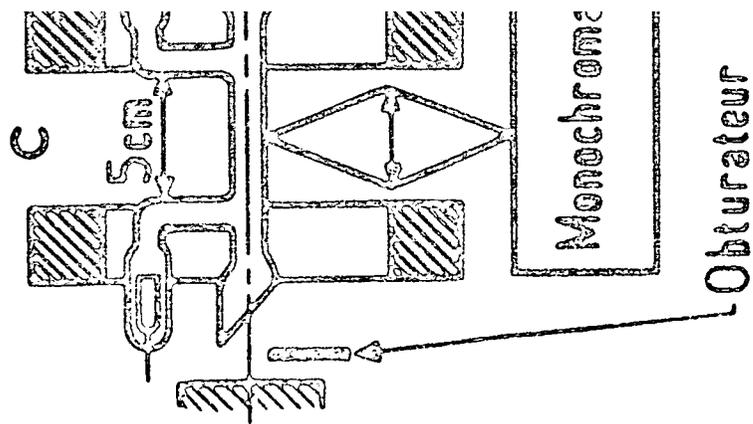
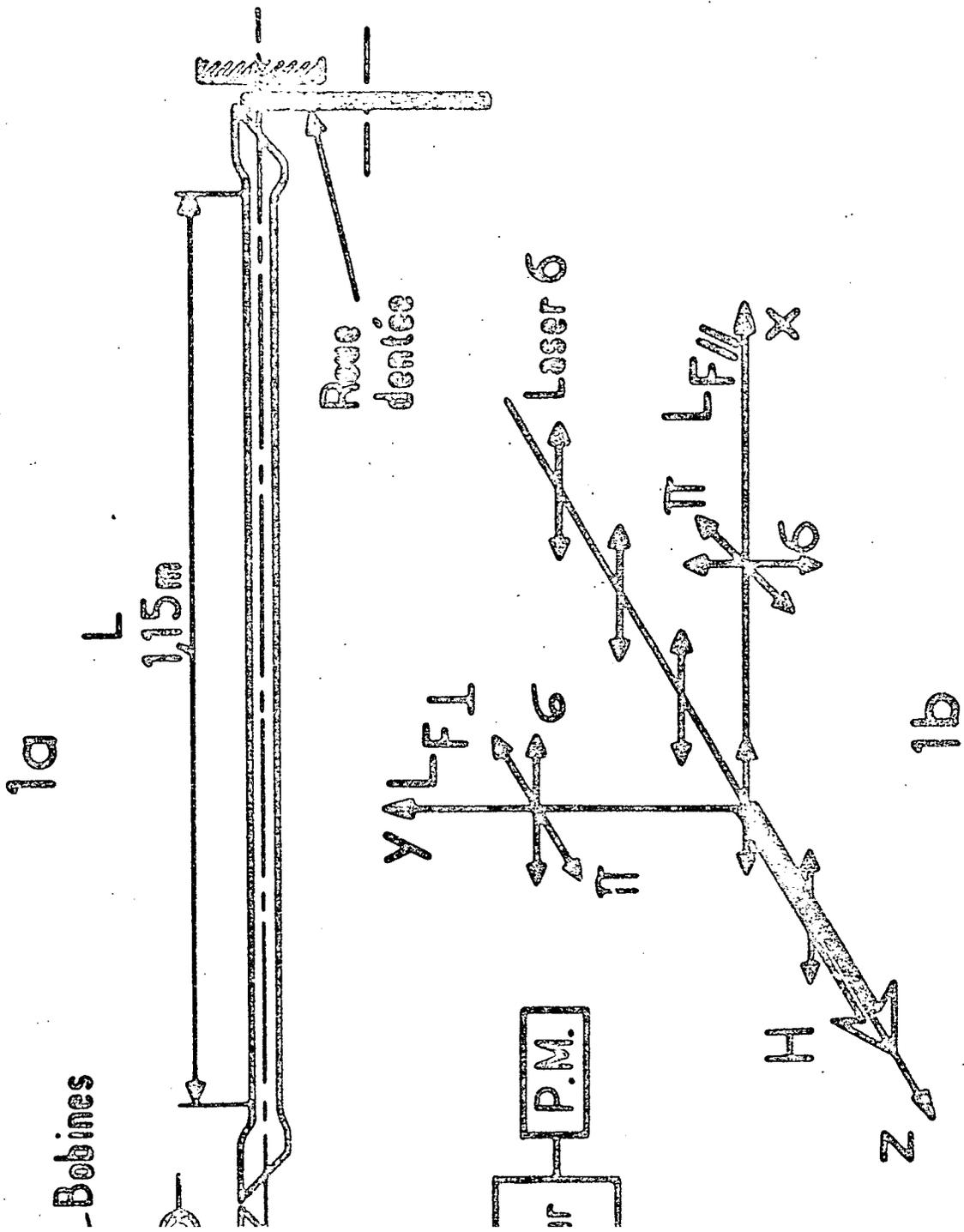
I.1 - Le montage expérimental

L'étude expérimentale des effets non-linéaires décrits dans la partie théorique a été effectuée sur les niveaux excités d'atomes de néon soumis au rayonnement d'un laser hélium-néon. Ce choix se justifiait par la très bonne connaissance qu'on a des caractéristiques à la fois du fonctionnement du laser hélium-néon et des décharges électriques dans un mélange d'hélium et de néon, en raison des nombreux travaux antérieurs, et plus particulièrement ceux de DECOMPS et DUMONT au laboratoire de l'E.N.S. Le montage expérimental est le même que celui décrit par DECOMPS dans sa thèse [1]:

Entre deux miroirs à multicouches diélectriques, nous disposons une cellule C de longueur 5 cm et un tube amplificateur L de longueur 115 cm (figure B-1).

a) La cellule C contient les atomes étudiés. Elle est remplie d'un mélange d'hélium et de néon en proportions variables qui est excité par une décharge continue d'intensité réglable. Deux bobines en position de Helmholtz permettent d'appliquer sur C un champ magnétique axial que l'on peut faire varier de manière continue de -150 à +150 Gauss. Ces bobines sont de petites dimensions (diamètre moyen de 18 cm) de façon à appliquer sur le tube L un champ relativement faible. L'homogénéité du champ magnétique est de l'ordre de $5 \cdot 10^{-3}$ sur toute la longueur de la cellule. Il a été étalonné avec un gaussmètre Bell à effet Hall.

b) L'oscillation laser est assurée par le tube L, beaucoup plus long que C, dans lequel la nature du mélange hélium-néon et les conditions de décharge sont ajustées pour assurer le maximum d'intensité lumineuse. En général, L est alors amplificateur pour un grand nombre de raies du néon. Le choix de la longueur d'onde d'oscillation (figure B-2) est assuré par des miroirs à multicouches diélectriques dont le coefficient de réflexion n'est proche de 1 que dans une faible gamme autour de la longueur d'onde recherchée. Cependant, quel que soit le choix des miroirs, l'oscillation peut se produire sur la longueur d'onde $\lambda = 3,39 \mu$ ($3s_2 - 3p_4$). Pour bloquer l'oscillation, on met du méthane (qui est absorbant à $3,39 \mu$) dans les intervalles libres de la cavité. Le laser oscille alors uniquement sur une des autres transitions possibles. Nous nous sommes intéressés aux transitions suivantes :



FI B-1 : MONTAGE EXPERIMENTAL ET DIRECTIONS D'OBSERVATION

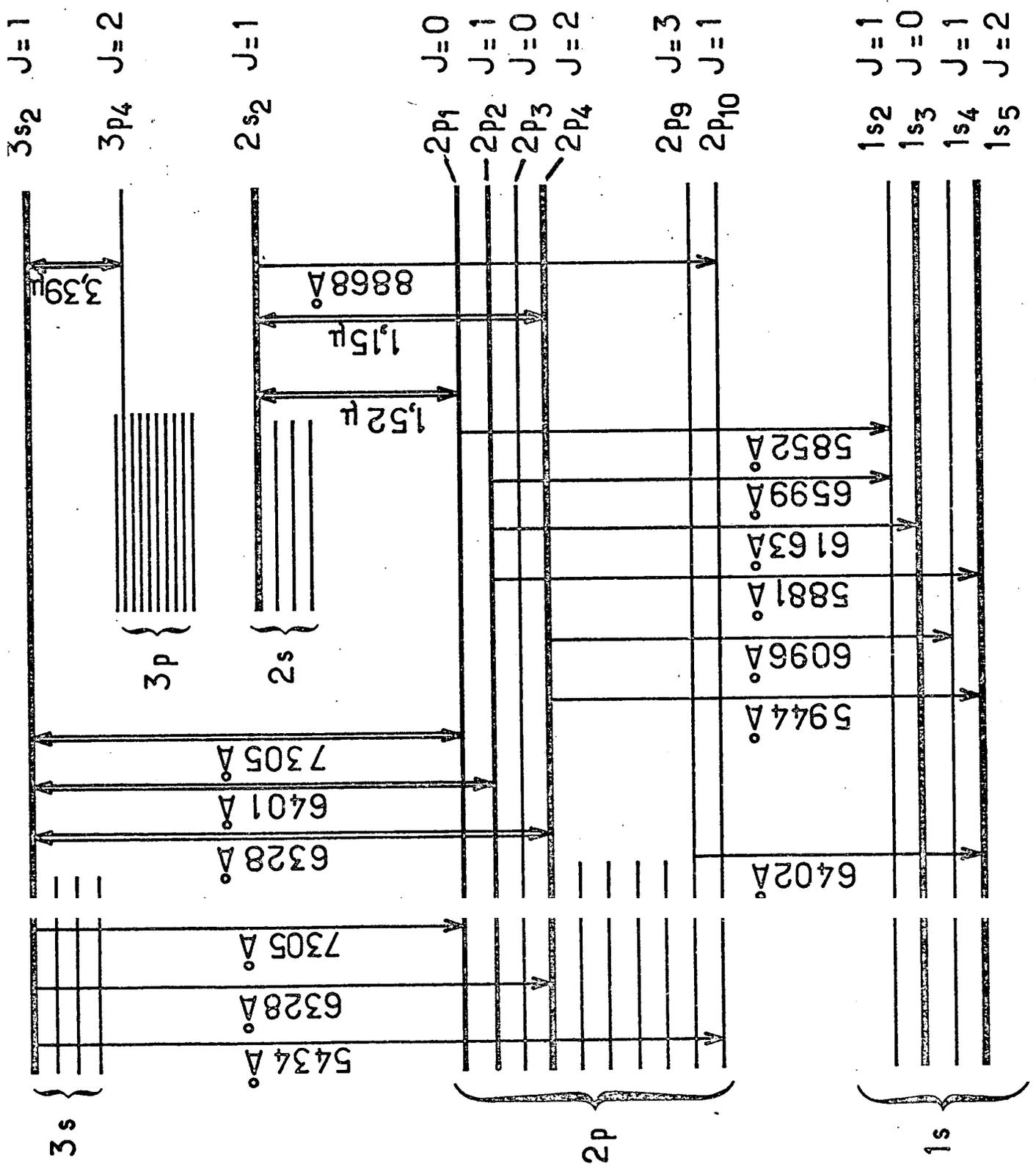


FIGURE B-2 : PREMIERS NIVEAUX EXCITES DU NEON

$3s_2 \rightarrow 2p_1$	$\lambda = 7305 \text{ \AA}$
$3s_2 \rightarrow 2p_2$	$\lambda = 6401 \text{ \AA}$
$3s_2 \rightarrow 2p_4$	$\lambda = 6328 \text{ \AA}$
$2s_2 \rightarrow 2p_1$	$\lambda = 1,52 \text{ \mu}$
$2s_2 \rightarrow 2p_4$	$\lambda = 1,15 \text{ \mu}$

Le tube L et la cellule C étant fermés aux deux extrémités par des fenêtres de Brewster qui assurent un minimum de pertes pour la cavité, l'oscillation laser est de polarisation rectiligne " σ " par rapport au champ magnétique (figure B-1).

c) On observe la lumière de fluorescence émise par les atomes de C perpendiculairement à l'axe du laser simultanément dans deux directions respectivement parallèle et perpendiculaire à la direction de polarisation du laser (figure B-1). Dans chaque direction d'observation, le faisceau lumineux traverse un polariseur (π ou σ) et les différentes raies de fluorescence sont isolées par un monochromateur (Jarrell-Ash M 25 de focale 25 cm) et détectées par un photomultiplicateur (E.M.I. 9558 QB dans le visible, 5000 Å-7000 Å, et R.C.A. C31000 dans le proche infrarouge, 7000-9000 Å). L'adjonction d'une lame semi-transparente et d'un deuxième ensemble monochromateur-photomultiplicateur dans chaque direction d'observation permet l'étude simultanée de deux raies de fluorescence. Dans la plupart des expériences, on ne s'intéresse qu'aux modifications de la lumière de fluorescence sous l'effet du laser. Dans ces cas, pour améliorer le rapport signal sur bruit, on a placé dans la cavité une roue dentée qui interrompt périodiquement l'oscillation laser (130 cycles/seconde) et on mesure l'amplitude de la modulation induite dans le courant photoélectrique à l'aide de détecteurs synchrones, la référence étant fournie par le signal de sortie d'un détecteur mesurant directement l'intensité du laser.

Pour finir, nous rappellerons l'expression de l'intensité de la raie de fluorescence $b \rightarrow g$ en fonction de la matrice densité du niveau b. Les notations employées sont celles de la figure B-1.

Pour la composante de polarisation linéaire " σ ", l'intensité est proportionnelle à : (*)

$$I_{bg}^{\sigma} = b\rho_0^0 + (-)^{J_b+J_g+1} \frac{1}{3\sqrt{2J_b+1}} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \cdot \left[\frac{b\rho_0^2}{\sqrt{6}} \pm bR_2^2 \right] \quad (B,1)$$

(*) Sauf indication contraire, ρ et I représenteront les modifications de la matrice densité et de la lumière de fluorescence dues à l'irradiation laser.

où le signe + correspond à $\ell^{\sigma//}$ et le signe - à $\ell^{\sigma\perp}$ (voir figure B-1)
 ${}_b R_2^2$ est la partie réelle de ${}_b \rho_2^2$ (éq. II-20). On voit que $\ell^{\sigma//} - \ell^{\sigma\perp}$ est
 proportionnel à ${}_b R_2^2$, dont les variations en fonction du champ magnétique
 donnent l'effet Hanle.

Pour la composante de polarisation π , quelle que soit la direction
 d'observation, on a :

$$\ell_{bg}^{\pi} = {}_b \rho_0^0 + (-)^{J_b+J_g} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \sqrt{6(2J_b+1)} {}_b \rho_0^2 \quad (B,2)$$

I.2 - Avantages et inconvénients du montage expérimental

L'introduction de la cellule de pompage à l'intérieur de la cavité
 permet de profiter des grandes densités d'énergie existant à l'intérieur de la
 cavité d'un laser à gaz. Ceci est essentiel pour l'étude des effets non linéai-
 res, certains n'apparaissant qu'à de très fortes intensités d'irradiation.

Ce montage présente cependant un inconvénient majeur : le contrôle de
 l'intensité laser n'est pas aussi facile que si la cellule se trouvait à l'exté-
 rieur de la cavité. Dans ce dernier cas, l'utilisation d'un atténuateur à éche-
 lons ou de deux polariseurs croisés permet de faire varier l'intensité du laser
 sans modifier la répartition spatiale du faisceau ni son spectre (qui est lié
 au nombre de modes).

Lorsque la cellule est à l'intérieur de la cavité, pour faire varier
 l'intensité, nous utilisons un diaphragme placé entre le tube amplificateur L
 et le miroir qui en est le plus proche. Ce diaphragme obture partiellement le
 faisceau laser. Les inconvénients possibles de cette méthode sont multiples :
 variations du nombre de modes, variations de la section du faisceau laser,
 déplacement du faisceau. On peut cependant espérer que, le diaphragme se trou-
 vant dans la partie de la cavité la plus éloignée de la cellule, du fait de la
 diffraction, l'obturation du faisceau laser au niveau du diaphragme modifiera
 peu sa section au niveau de la cellule. Mais il faudra le vérifier pour chaque
 raie et pour les différentes configurations de la cavité (ici les rayons de
 courbure des miroirs). Toutes ces considérations vont nous amener à définir les
 grandeurs observables et étudier leur signification. Pour ce faire, il est im-
 portant de bien définir d'abord le but que nous nous fixons.

I.3 - But des expériences

Le but des expériences est double :

D'abord observer les effets prévus par la théorie (c'est donc une vérification qualitative qui est faite en premier lieu).

Ensuite vérifier quantitativement les prévisions théoriques. Dans cette dernière étude, il faut distinguer deux étapes.

- a) Est-ce que, pour une intensité donnée du laser, toutes les expériences peuvent s'interpréter à l'aide d'un seul paramètre dépendant des caractéristiques du faisceau laser, γ (inverse du temps de pompage par le laser) ? (*) Pour ceci, il faut que, non seulement les conditions de l'approximation "Broad Line" soient vérifiées (cf paragraphe III A de l'article I), mais en plus que l'intensité d'irradiation par le laser soit suffisamment uniforme sur tout le volume de la décharge observé à l'aide de la fluorescence.
- b) S'il est possible d'expliquer les expériences avec un paramètre γ et de le mesurer, quelles sont les variations de γ en fonction de i_λ , intensité du faisceau laser mesurée à l'extérieur de la cavité ?

La relation I-46, donnant γ , s'écrit :

$$\gamma = \frac{\pi |P_{ab}|^2 \sum_{\mu} |\mathcal{E}^{\mu}|^2}{\hbar^2 N \Delta \omega} \quad (B,3)$$

(on a réintroduit \hbar^2 pour l'homogénéité) .

Par ailleurs, on peut montrer que l'intensité i_λ du faisceau laser s'exprime sous la forme :

$$i_\lambda = 2 \epsilon_0 c S \sum_{\mu} |\mathcal{E}_T^{\mu}|^2 \quad (B,4)$$

où ϵ_0 est la permittivité diélectrique du vide, c la vitesse de la lumière, S la section du faisceau et \mathcal{E}_T^{μ} est le champ électrique du mode μ à l'extérieur de la cavité. Utilisant la relation entre l'intensité du mode μ à l'extérieur et à l'intérieur de la cavité

$$|\mathcal{E}^{\mu}|^2 = \frac{2}{T} |\mathcal{E}_T^{\mu}|^2 \quad (B,5)$$

(T est le facteur de transmission du miroir et le facteur 2 provient du carac-

(*) On suppose par ailleurs connus tous les paramètres décrivant la relaxation des niveaux de la transition, qui peuvent être, en règle générale, déduits de l'étude de la réponse linéaire, obtenue par extrapolation à intensité laser nulle (DECOMPS [1]).

tère stationnaire de l'onde dans la cavité), nous obtenons finalement :

$$\gamma = \varpi \cdot i_\lambda \quad (B,6)$$

avec

$$\varpi = \frac{\pi}{\epsilon_0 c h^2 T} \cdot \frac{|P_{ab}|^2}{S \cdot N \Delta \omega} \quad (B,7)$$

On peut utiliser l'expression de la probabilité de transition par émission spontanée $b \rightarrow a$ (MESSIAH [2], p. 900, formule (247)) :

$$\gamma_{ba} = \frac{k_0^3}{3 \pi \epsilon_0 \hbar} \frac{|P_{ab}|^2}{(2J_b + 1)} \quad (B,8)$$

où $k_0 = 2\pi/\lambda$ est le vecteur d'onde pour la longueur d'onde de la transition, λ . Alors

$$\varpi = \frac{3 (2J_b + 1)}{8 \pi^2 \hbar c^2} \cdot \frac{L \lambda^3}{NT} \cdot \frac{\gamma_{ba}}{S} \quad (B,9)$$

(L est la longueur de la cavité $\rightarrow \Delta\omega = \pi c/L$, relation I-26).

Si le nombre de modes N et la section S du faisceau sont indépendants de l'intensité laser, ϖ est constant et γ est proportionnel à i_λ . Dans le cas contraire, la relation $\gamma(i_\lambda)$ sera plus complexe et il faudra l'étudier en détail. En pratique, cela dépendra surtout du mode de fonctionnement de la cavité laser. Nous verrons que lorsque la cavité oscille sur des modes axiaux TEM_{00} , la section du faisceau est constante et γ/i_λ est constant. (En général, N varie peu). Par contre, cette propriété ne sera plus vraie lorsqu'il apparaîtra des modes obliques.

I.4 - Définition des observables "significatives"

Nous allons maintenant étudier la correspondance entre grandeurs expérimentales obtenues à partir de la lumière de fluorescence et observables théoriques idéales, telles qu'elles sont définies sur un ensemble d'atomes soumis à une irradiation laser uniforme. Ce sont ces dernières qui sont étudiées dans la partie théorique : il s'agit donc de savoir dans quelles conditions on peut les assimiler aux observables expérimentales. DECOMPS [1] avait déjà étudié ce problème dans le but de trouver la signification des grandeurs extrapolées à intensité laser nulle (réponse linéaire). Il s'agit ici de reprendre les mêmes problèmes pour des intensités non nulles.

Ces problèmes sont essentiellement au nombre de trois :

- 1) Uniformité de l'irradiation laser sur le volume étudié (problème lié à la définition de γ).
- 2) Déplacement du faisceau avec l'intensité laser (problème relié à la signification de l'intensité absolue des raies de fluorescence).
- 3) Variation de la section du faisceau et du nombre de modes (problèmes liés à la relation $\gamma(i_\lambda)$).

Nous allons présenter quelques expériences préliminaires effectuées sur la transition $2s_2 (J=1) - 2p_1 (J=0)$ du néon ($\lambda = 1,52 \mu$), et qui vont nous permettre de répondre aux deux premières questions. Rappelons d'abord quelques résultats théoriques dans le cas d'une transition laser $J_b = 1 - J_a = 0$.

I.4.a. Rappels théoriques pour une transition 1 - 0

- 1) Les modifications de populations des niveaux a et b et l'alignement longitudinal du niveau b sont proportionnels, quels que soient le champ magnétique et l'intensité du laser (équation II-29).

$$-\Gamma_a^*(0) \rho_a^0 = \sqrt{3} \Gamma_b(0) \rho_b^0 = \sqrt{6} \Gamma_b(2) \rho_b^0 \quad (B,10)$$

Comme on l'a vu dans l'article II, ces relations expriment simplement la conservation de la population atomique globale : tout atome quittant un des niveaux de la transition sous l'effet du laser doit obligatoirement se retrouver dans l'autre niveau.

- 2) La population du niveau a présente une résonance de saturation en champ magnétique nul ayant exactement la forme de l'effet Hanle du niveau b (équations II-29, 31, 38)

$$\rho_a^0(H) = \frac{2 n \gamma}{3 \Gamma_a^*(0) \left[1 + \eta \frac{\gamma}{3 \Gamma_b(2)} \right]} \left[1 - \mathcal{L}_b^2(H) \right] \quad (B,11)$$

où $\mathcal{L}_b^2(H)$ est l'effet Hanle de b normalisé à 1 ($\mathcal{L}_b^2(0) = 1$ et $\mathcal{L}_b^2(\infty) = 0$. Voir équation II-40), n est la différence de populations entre b et a en l'absence de laser et η est un paramètre sans dimensions

$$\eta = \frac{1}{3} + \frac{2 \Gamma_b(2)}{3 \Gamma_b(0)} + \frac{2 \Gamma_b(2)}{\Gamma_a^*(0)} \quad (B,12)$$

L'amplitude \mathcal{S} de la résonance de saturation est égale à

$$\mathcal{S} = \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2) + (\eta+1)\gamma} \quad (\text{B,13})$$

Nous reviendrons plus loin sur l'interprétation physique de cette résonance.

3) En champ magnétique nul ($H=0$) ou très grand ($H \infty$), la modification de population du niveau a présente des variations homographiques en fonction de γ .

En champ nul, $L_b^2(0) = 1$ et

$$\frac{\gamma}{a\rho_0^0(0)} = \frac{3\Gamma_a^*(0)}{2n} \left[1 + (\eta+1) \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)} \right] \quad (\text{B,14})$$

En champ fort, $L_b^2(\infty) = 0$ et

$$\frac{\gamma}{a\rho_0^0(\infty)} = \frac{3\Gamma_a^*(0)}{2n} \left[1 + \eta \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)} \right] \quad (\text{B,15})$$

Cherchons d'abord à vérifier les relations (B,14) et (B,15).

I.4.b. Variations de l'intensité absolue des raies de fluorescence

Comme le niveau a a un moment cinétique nul, la fluorescence émise par les atomes se trouvant dans ce niveau est isotrope. Quelles que soient la direction d'observation et la polarisation, on a $\mathcal{L}_{ag} = a\rho_0^0$. Ce sera donc un test important : toute mesure significative doit être identique pour les différentes directions d'observation. Nous supposons que le système de détection permet de mesurer l'intensité de la fluorescence émise par les atomes se trouvant à l'intérieur d'un volume de décharge, V_d , dans lequel l'irradiation lumineuse est uniforme (cette hypothèse sera discutée dans le paragraphe suivant). Alors le système de détection mesure une quantité proportionnelle à

$$L(H) = V_d \mathcal{L}_{ag}(H) \quad (\text{B,16})$$

A l'aide de (B,6) et (B,16), les équations (B,14) et (B,15) se mettent sous la forme :

$$\frac{i_\lambda}{L(0)} = \frac{3\Gamma_a^*(0)}{2n\omega V_d} \left[1 + (\eta+1) \frac{\omega}{3\Gamma_b(2)} i_\lambda \right] \quad (\text{B,17})$$

et

$$\frac{i_{\lambda}}{L(\infty)} = \frac{3\Gamma_a^*(0)}{2n\omega V_d} \left[1 + \eta \frac{\omega}{3\Gamma_b(2)} i_{\lambda} \right] \quad (B,18)$$

i_{λ}/L variera linéairement avec i_{λ} si ω et V_d sont constants.

La figure B-3 montre les variations de i_{λ}/L (5852 Å) en fonction de l'intensité de la raie laser $\lambda = 1,52 \mu$. Les variations observées ressemblent qualitativement aux variations prévues par la théorie, mais on peut cependant remarquer une très nette courbure dirigée vers le haut qui apparaît aux faibles intensités du laser. Il faut donc prendre en considération des variations possibles de ω ou de V_d en fonction de i_{λ} .

On peut d'abord supposer que le volume détecté, V_d , ne change pas, c'est-à-dire que la position et la section du faisceau sont constantes. ω pourrait alors présenter des variations liées à une diminution du nombre de modes quand l'intensité décroît. Cependant, pour les fortes intensités laser, les courbes sont pratiquement linéaires et on peut considérer que, dans cette région, ω est constant. Ceci semble confirmé par le fait que les droites tangentes aux courbes à intensité laser maximum se coupent pour $i_{\lambda} = 0$, comme prédit par la théorie (équations (B,17) et (B,18)). Ces droites ont été tracées en pointillés sur la figure B-3. On peut alors déduire les valeurs des paramètres η et $\Gamma_b(2)$ intervenant dans les équations (B,17) et (B,18), à partir des relations

$$\eta = BC/AB \quad \text{et} \quad \Gamma_b(2) \propto OI \cdot \frac{i_{\lambda}^{(0)}}{AB}$$

où A, B, C, I et $i_{\lambda}^{(0)}$ sont définis sur la figure B-3. $\Gamma_b(2)$ ne peut être déduit qu'à une constante multiplicative près.

Cependant, il apparaît immédiatement un problème très sérieux : notre montage permet de faire des mesures identiques dans deux directions d'observation respectivement parallèle et perpendiculaire à la polarisation du laser (figure B-1). Or, comme on peut le voir sur la figure B-4, les valeurs obtenues dans les deux directions d'observation sont différentes, surtout en ce qui concerne $\Gamma_b(2)$. Ceci indique clairement que, dans ces deux directions, on n'observe pas les mêmes régions de la décharge irradiées par le faisceau laser, et que de plus le faisceau se déplace (et donc V_d varie avec i_{λ}), puisque les variations de la fluorescence avec l'intensité de la raie laser ne sont pas identiques dans les deux directions. On arrive à la conclusion qu'on ne peut donc attribuer aucune signification à l'intensité absolue des raies de fluorescence.

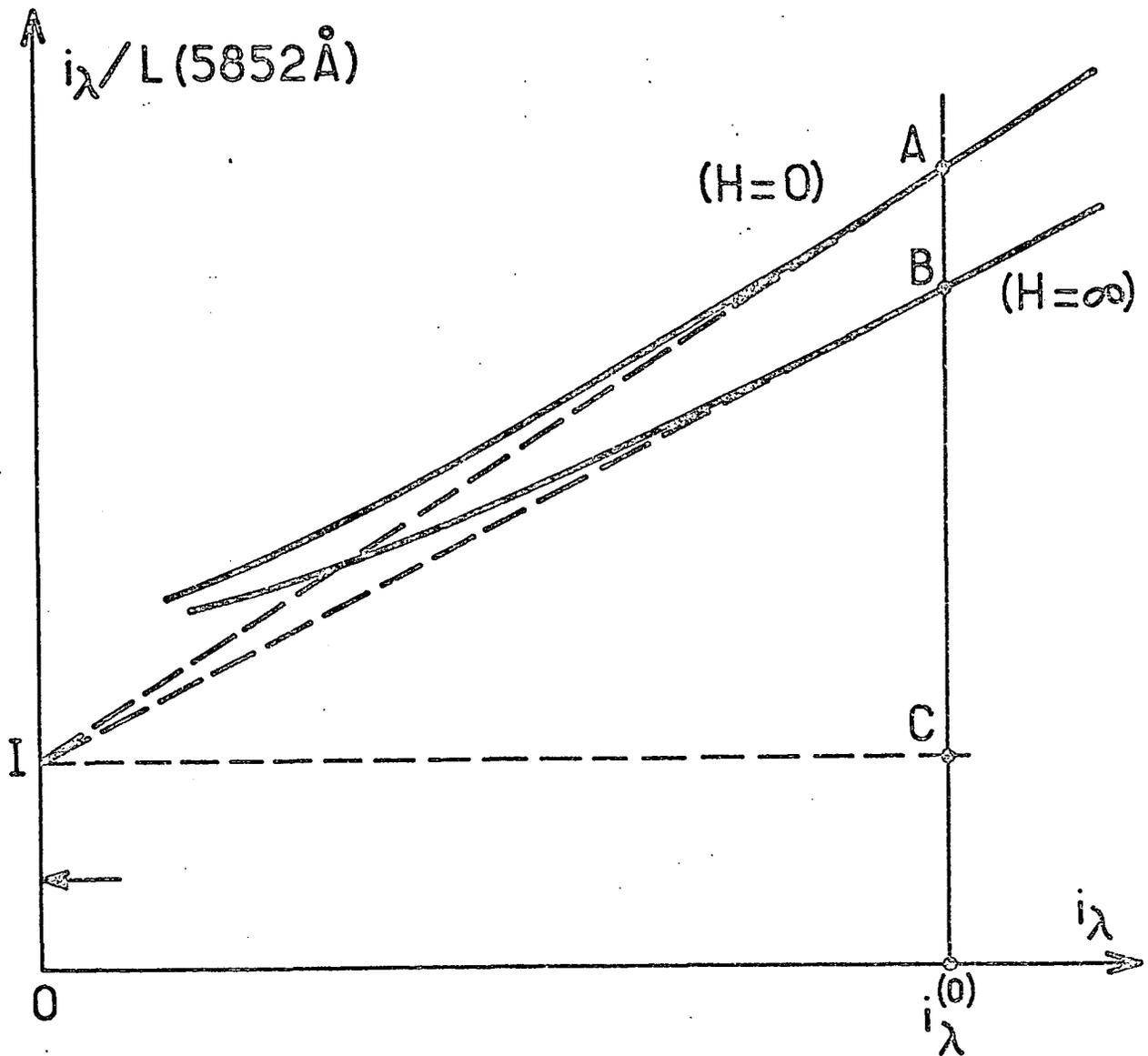


FIGURE B-3 : Variations de i_λ/L (5852 \AA) en fonction de l'intensité i_λ de la raie laser $\lambda = 1,52 \mu$ ($2s_2 - 2p_1$) - (La fluorescence à 5852 \AA correspond à la transition $2p_1 + 1s_2$) - Néon 10% - Hélium 90% - $p = 2,2$ torrs - $i_G = 4,1$ mA.

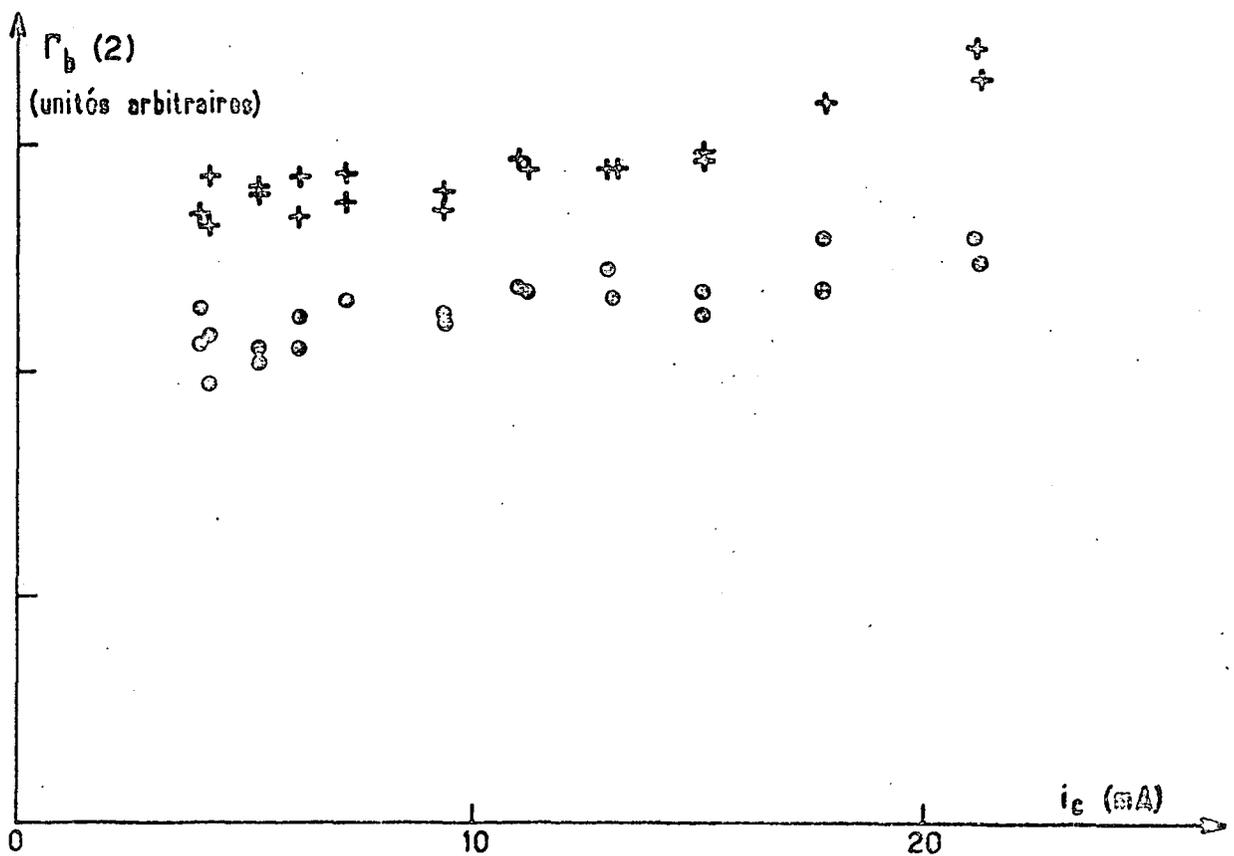
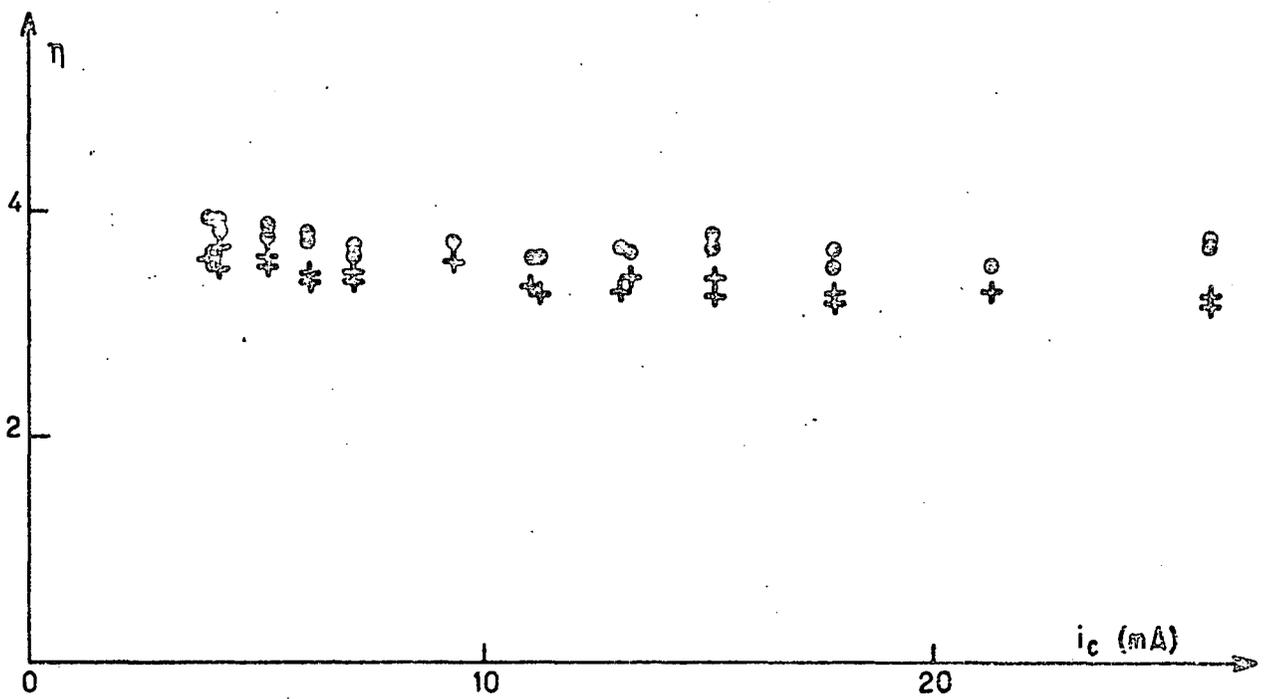


FIGURE B-4 : Variations des paramètres η et $\Gamma_b(2)$ en fonction de l'intensité de décharge (2,2 torrs d'un mélange 10% Ne - 90% He).
 Les points et les croix correspondent à deux directions perpendiculaires de détection de la fluorescence.

Pour comparer l'intensité de deux raies de fluorescence différentes, il est alors essentiel d'observer les mêmes régions de la décharge. Ceci peut être réalisé en utilisant pour les deux raies la même direction d'observation et la même géométrie de détection, grâce à l'emploi d'une lame semi-réfléchissante placée sur le trajet de la lumière de fluorescence. Cette technique a été utilisée pour vérifier les relations de proportionnalité (B,10) entre les différentes composantes de la matrice densité. La figure B-5 montre le rapport entre la composante π de la modification induite par le laser sur la raie de fluorescence 8868 Å ($2s_2 \rightarrow 2p_{10}$) et la même quantité pour la raie 5852 Å ($2p_1 \rightarrow 1s_2$). Ce rapport a été mesuré directement à l'aide d'un ratiomètre (Multiplier PAR TM230). L_{π} (8868 Å) est proportionnel aux modifications de populations des sous-niveaux $m = \pm 1$ de $2s_2$ (c'est-à-dire $b_{00}^{\rho_0} + \frac{b_{00}^{\rho_0^2}}{\sqrt{2}}$), et L (5852 Å) à la modification de population du $2p_1$. Comme le montre la figure B-5, la proportionnalité entre ces modifications a été vérifiée pour toute intensité du laser et pour toute valeur du champ magnétique.

I.4.c. Uniformité de l'irradiation laser

Nous allons montrer que la densité d'énergie lumineuse est constante sur tout le volume de décharge irradié par le laser. Ce résultat a été établi en étudiant la résonance de saturation en champ nul prédite par les relations (B,11 - B,13). Cette résonance a été effectivement observée aussi bien sur les composantes π des raies de fluorescence des niveaux $2s_2$ (8868 Å) et $2p_1$ (5852 Å, 5400 Å) que sur la fluorescence des niveaux $2p$ alimentés par cascades radiatives à partir du niveau $2s_2$, comme le niveau $2p_4$ (5944 Å, 6096 Å) (voir figure B-6) (En effet, par cascades radiatives, il apparaît sur les niveaux $2p$ une modification de populations proportionnelle à celle induite par le laser dans le niveau $2s_2$ [3]). Comme le prévoit la théorie, ces résonances de saturation sont identiques : même amplitude (relativement à la modification de fluorescence en champ magnétique fort) et même largeur. Le point important est que ceci a pu être vérifié sur des résonances provenant de deux directions d'observation différentes (voir figure B-6 et aussi figure B-10), et donc de deux régions irradiées différentes. Cette similitude des résonances étant indépendante du réglage des voies d'observation, on peut considérer que le taux de saturation de la transition $2s_2-2p_1$ par la raie laser est indépendant de la région observée et donc que l'irradiation laser est uniforme à la précision des mesures (*) .

(*) Les mêmes résultats ont été obtenus dans le cas d'une irradiation laser à 7305 Å (transition $3s_2-2p_1$).

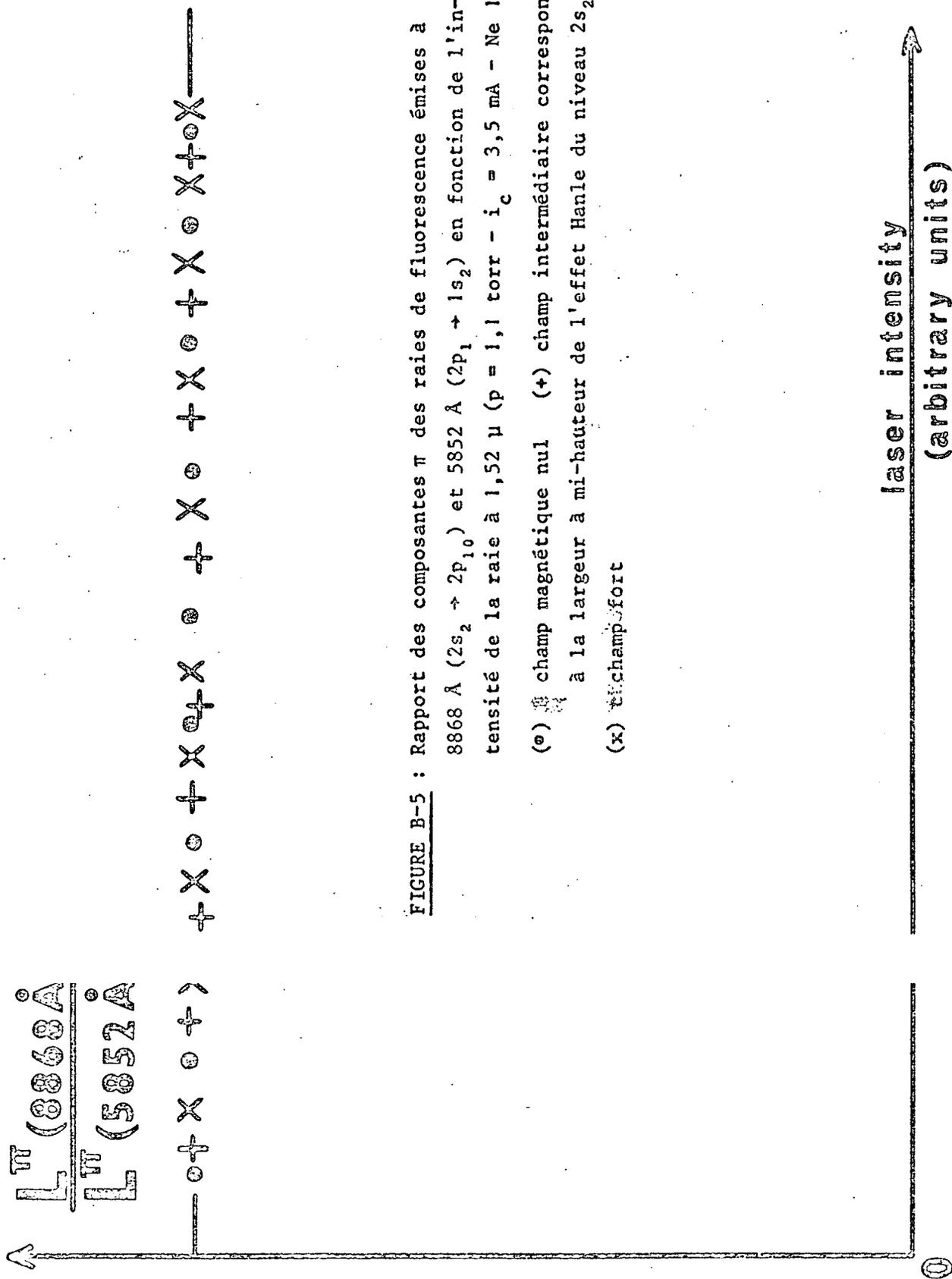


FIGURE B-5 : Rapport des composantes π des raies de fluorescence émises à

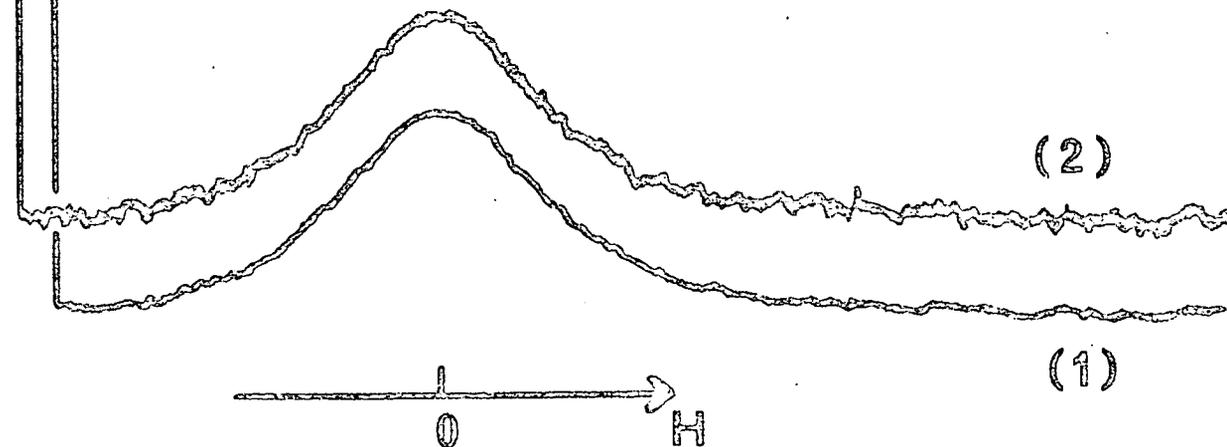
8868 Å ($2s_2 \rightarrow 2p_{10}$) et 5852 Å ($2p_1 \rightarrow 1s_2$) en fonction de l'intensité de la raie à 1,52 μ ($p = 1,1$ torr - $i_c = 3,5$ mA - Ne 100%)

- (o) champ magnétique nul (+) champ intermédiaire correspondant à la largeur à mi-hauteur de l'effet Hanle du niveau $2s_2$
- (x) champ fort

laser off

FIGURE B-6 : Proportionnalité, pour une intensité laser fixée, entre les variations avec le champ magnétique des composantes π des raies de fluorescence à 5852 Å ($2p_1 + 1s_2$, courbe 1) et 6096 Å ($2p_4 + 1s_4$, courbe 2) - Ne 100% - $p = 1,5$ torr - $i_c = 6$ mA.
Le niveau $2p_4$ est peuplé par émission spontanée à partir du niveau $2s_2$

laser on



C'est ce résultat qui donne une signification à l'étude expérimentale de l'effet Hanle pour des intensités laser non nulles, et de son élargissement avec l'intensité d'irradiation. L'effet Hanle étant obtenu par opposition des signaux obtenus dans deux directions perpendiculaires, il est essentiel que l'intensité d'irradiation soit uniforme de façon à ce que les deux signaux correspondent à un même taux de saturation. Dans le cas contraire, seule la largeur extrapolée à intensité laser nulle a un sens [1].

Pour finir, signalons que ces derniers résultats sont confirmés par des mesures antérieures de DECOMPS [1] sur la transition $3s_2 - 2p_4$ ($\lambda = 6328 \text{ \AA}$). DECOMPS avait étudié une grandeur $F(a, f, f')$ définie sur la composante π des raies de fluorescence émises du niveau inférieur de la transition laser (ici le niveau $2p_4$). Définissant M_{af}^π comme le rapport entre la modification de la fluorescence ($a \rightarrow f$) induite par le laser, L_{af}^π , et l'intensité de la fluorescence en l'absence de laser, $(0)_{L_{af}^\pi}^*$,

$$M_{af}^\pi = \frac{L_{af}^\pi}{(0)_{L_{af}^\pi}^*} \quad (\text{B,19})$$

DECOMPS avait trouvé que M dépendait de la direction d'observation choisie, ce qui indiquait que la région observée variait avec cette direction. Par contre, la grandeur

$$F(a, f, f') = \frac{M_{af}^\pi}{M_{af'}^\pi} \quad (\text{B,20})$$

où M_{af} et $M_{af'}$ sont mesurés dans la même direction (**), ne dépend plus de la direction d'observation. Comme pour la résonance de saturation, ce résultat expérimental signifie que le taux de saturation est identique dans les deux directions d'observation.

I.4.d. Conclusion

Les observables significatives sont donc :

- 1) Les grandeurs sans dimension, c'est-à-dire essentiellement les rapports d'intensités de raies de fluorescence détectées dans une même direction. On peut ranger sous cette catégorie :

(**) On suppose $J_f \neq J_{f'}$, de façon à ce que F ne soit pas trivialement égal à un.

(*) L'introduction de ce rapport M a pour but d'éliminer les coefficients définissant la sensibilité du photomultiplicateur et la transmission du monochromateur.

(i) L'amplitude de la résonance de saturation (définie sur la composante π d'une seule raie de fluorescence $b \rightarrow g$; cf. éq. (B,1 et (B,2)) :

$$\begin{aligned} \mathcal{S}_{bg} &= 1 - \frac{L_{bg}^{\pi}(0)}{L_{bg}^{\pi}(\infty)} = 1 - \frac{\varrho_{bg}^{\pi}(0)}{\varrho_{bg}^{\pi}(\infty)} \\ &= 1 - \frac{b\rho_0^0(0)+(-)^{J_b+J_g} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \sqrt{6(2J_b+1)} b\rho_0^2(0)}{b\rho_0^0(\infty)+(-)^{J_b+J_g} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \sqrt{6(2J_b+1)} b\rho_0^2(\infty)} \quad (B,21) \end{aligned}$$

(ii) La grandeur F (rapport des composantes π de deux raies de fluorescence différentes détectées dans une même direction) :

$$\begin{aligned} F(b,g,g';H) &= \frac{M_{bg}^{\pi}(H)}{M_{bg'}^{\pi}(H)} = \frac{\varrho_{bg}^{\pi}(H)}{\varrho_{bg'}^{\pi}(H)} \\ &= \frac{b\rho_0^0(H)+(-)^{J_b+J_g} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \sqrt{6(2J_b+1)} b\rho_0^2(H)}{b\rho_0^0(H)+(-)^{J_b+J_{g'}} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_{g'} & J_b & J_b \end{Bmatrix} \sqrt{6(2J_b+1)} b\rho_0^2(H)} \quad (B,22) \end{aligned}$$

(iii) Le taux d'anisotropie, R, défini sur la fluorescence σ . On définit dans chaque direction d'observation le rapport

$$P_{bg}^{\sigma}(H) = \frac{L_{bg}^{\sigma}(H)}{L_{bg}^{\sigma}(\infty)} = \frac{\varrho_{bg}^{\sigma}(H)}{\varrho_{bg}^{\sigma}(\infty)} \quad (B,23-a)$$

Le taux d'anisotropie est alors défini par comparaison des valeurs de $P^{\sigma//}(0)$ et $P^{\sigma\perp}(0)$

$$R = \frac{P^{\sigma//}(0) - P^{\sigma\perp}(0)}{P^{\sigma//}(0) + P^{\sigma\perp}(0)} \quad (B,23-b)$$

En champ magnétique fort, il n'y a plus d'alignement transversal ($\rho_2^2(\infty) = 0$) et donc, d'après (B,1), $\varrho^{\sigma\perp}(\infty) = \varrho^{\sigma//}(\infty)$. R possède par suite la particularité de n'être défini qu'à partir des composantes de la matrice densité en champ nul :

$$\begin{aligned}
 R_{bg} &= \frac{\rho_{bg}^{\sigma//}(0) - \rho_{bg}^{\sigma\perp}(0)}{\rho_{bg}^{\sigma//}(0) + \rho_{bg}^{\sigma\perp}(0)} \\
 &= \frac{(-)^{J_b+J_g+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \rho_2^{\sigma}(0)}{\frac{\rho_0^{\sigma}(0)}{3\sqrt{2J_b+1}} + (-)^{J_b+J_g+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \frac{\rho_0^{\sigma}(0)}{\sqrt{6}}}
 \end{aligned} \tag{B,23-c}$$

Pour une transition laser $J=1 - J=0$ et $J=1 - J=1$, les composantes de la matrice densité en champ nul sont proportionnelles (cf. équ. I-72-73-74); $F(H=0)$ et R sont donc indépendants de l'intensité laser et ne s'expriment qu'en fonction du rapport $\Gamma(2)/\Gamma(0)$. Ceci a été vérifié expérimentalement depuis longtemps [1][3][4]. Nous ne reviendrons pas sur ces expériences qui ont permis de mesurer $\Gamma(2)/\Gamma(0)$, et, dans la suite, il sera supposé implicitement que toute valeur de $\Gamma(2)/\Gamma(0)$ dont nous aurons besoin sera déduite de ces expériences.

2) Les formes de raie et les largeurs des diverses résonances (effet Hanle, résonance de saturation ...). L'effet Hanle fait intervenir la fluorescence σ dans deux directions perpendiculaires et doit, par conséquent, être défini à partir des grandeurs sans dimensions, $P^\sigma(H)$ (équation (B,23-a)). On le définira comme la variation avec le champ magnétique de la quantité

$$P^{\sigma//}(H) - P^{\sigma\perp}(H) = \frac{\rho^{\sigma//}(H) - \rho^{\sigma\perp}(H)}{\rho^{\sigma}(\infty)} \propto \text{Ré} [\rho_2^{\sigma}(H)] \tag{B,24}$$

(On s'est servi de la relation $\rho^{\sigma\perp}(\infty) = \rho^{\sigma//}(\infty)$.)

Dans la pratique, on égalisera électroniquement les signaux de fluorescence σ obtenus en champ fort dans les deux directions d'observation ($L^{\sigma\perp}(\infty) = L^{\sigma//}(\infty)$), et il suffira alors d'enregistrer la différence de ces deux signaux en fonction du champ magnétique.

II - TRANSITIONS $J_b = 1 - J_a = 0$

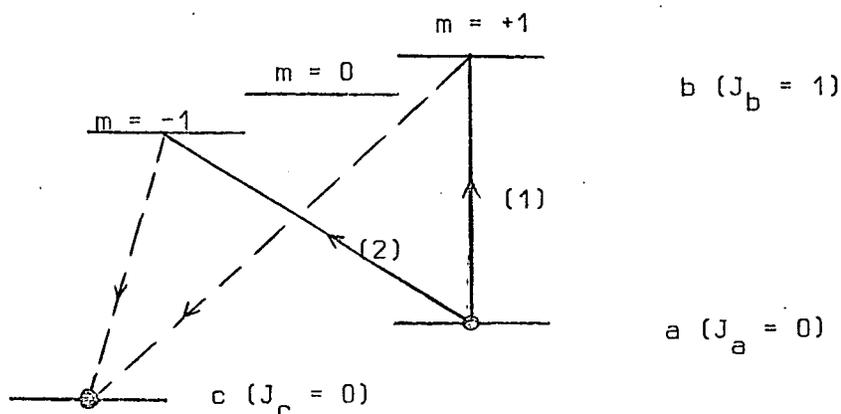
L'étude expérimentale des effets non-linéaires dans le cas d'une transition laser $J_b=1 - J_a=0$ a été effectuée sur les transitions $2s_2-2p_1$ ($\lambda = 1.52 \mu$) et $3s_2-2p_1$ ($\lambda = 7305 \text{ \AA}$) du néon.

II.1 - Transition $2s_2 - 2p_1$ ($\lambda = 1.52 \mu$)

II.1.a. Forme de raie de l'effet Hanle et de la résonance de saturation [25]

Comme le prédit la théorie (chapitre III de l'article II et équation (B,11)), la population du $2p_1$ présente une variation résonnante en champ magnétique nul (voir figure B-6), qui a la forme d'une courbe d'absorption de Lorentz identique à celle de l'effet Hanle du niveau $2s_2$, à la précision des mesures (fig. B-7). L'égalité des largeurs de l'effet Hanle et de la résonance de saturation a été vérifiée quelle que soit l'intensité du laser (fig. B-8) et quelle que soit la pression dans la cellule (fig. B-9).

La signification physique de ce résultat est évidente si on se rappelle que l'effet Hanle peut être interprété en termes d'interférence quantique dans la diffusion de rayonnement par l'intermédiaire de plusieurs chemins [5]



Pour un atome dans le niveau a , il existe deux chemins possibles pour arriver dans le niveau c , le chemin (1) passant par le sous-niveau $m = 1$ de b et le chemin (2) par le sous-niveau $m = -1$. Chaque chemin fait intervenir une absorption d'un photon laser (lignes continues) et une émission spontanée d'un photon de fluorescence (lignes discontinues). En champ magnétique nul, les deux sous-

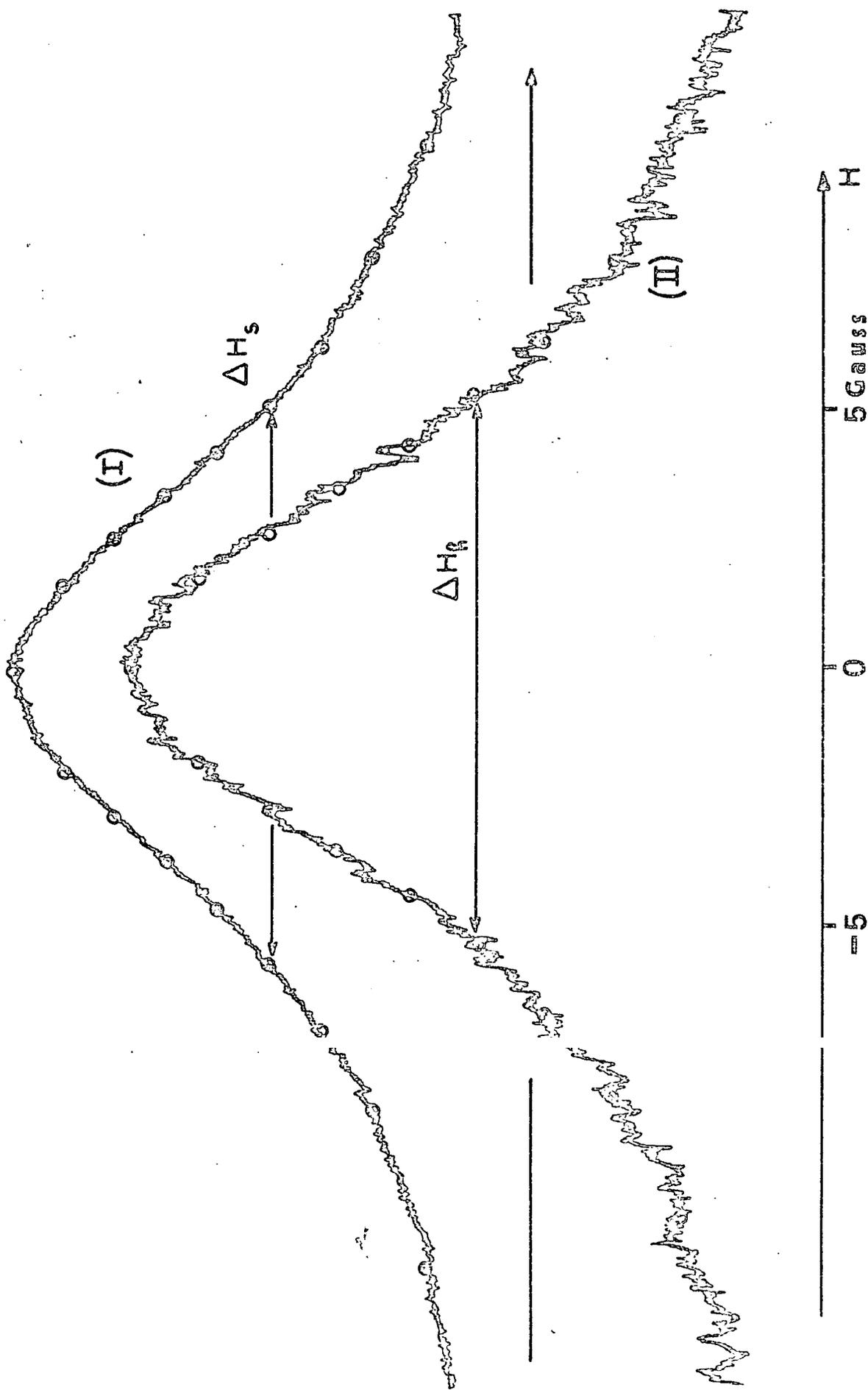


FIGURE B-7 : Effet Hanle du niveau $2s_2$ (courbe II, $\lambda = 9868 \text{ \AA}$) et résonance de saturation du niveau $2p$ (courbe I, $\lambda = 5852 \text{ \AA}$). Les points sont déduits de formes de Lorentz théoriques de largeurs ΔH_0 ($10.6 \pm 0.4 \text{ G}$) et ΔH_s ($10.8 \pm 0.3 \text{ G}$). (Ne 100% - p = 0,9 torr - $i_c = 6,2 \text{ mA}$)

$\delta_{2s_2}^{4s}$
(MHz)

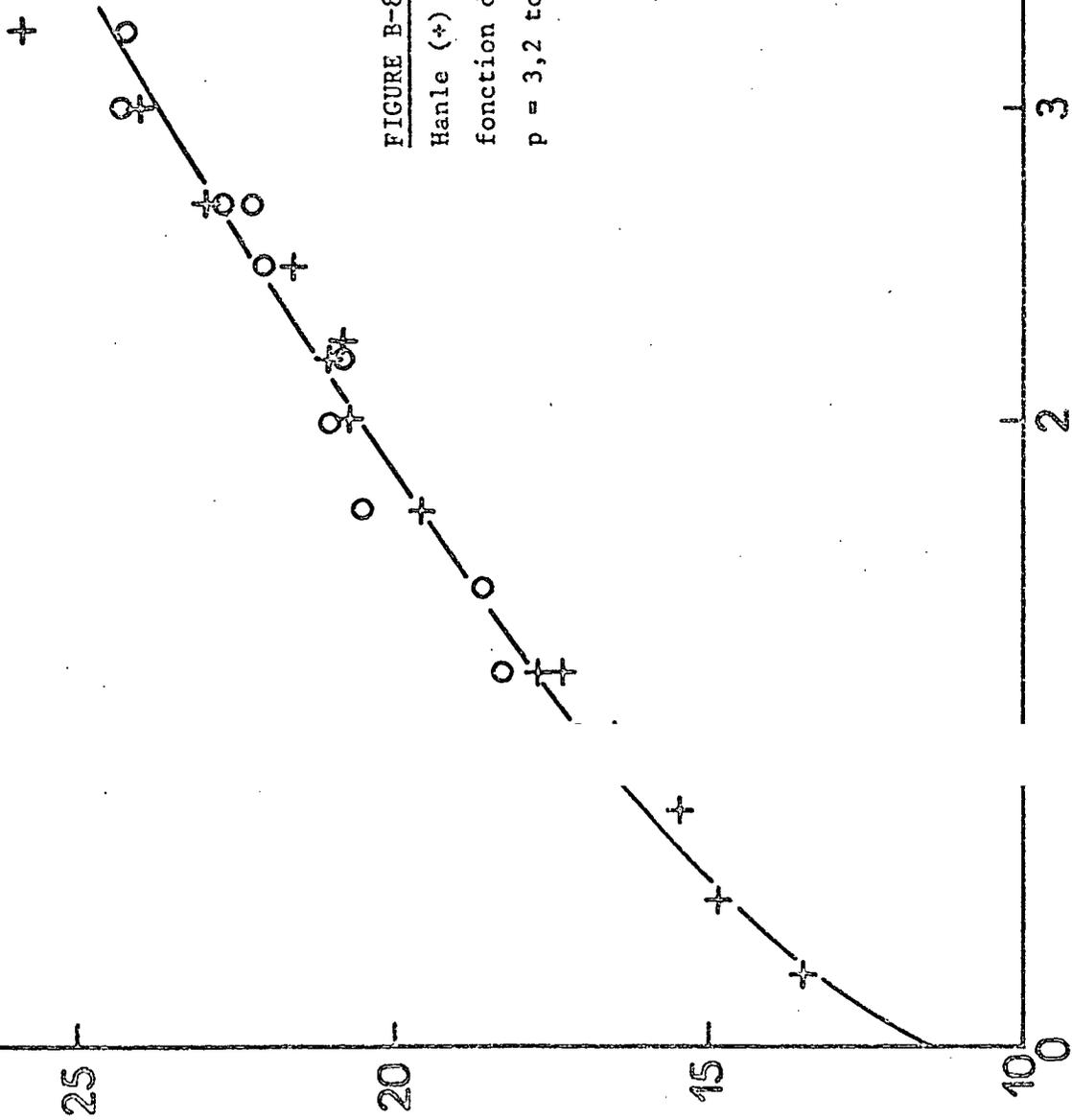


FIGURE B-8 : Variations de la largeur de l'effet Hanle (+) et de la résonance de saturation (o) en fonction de l'intensité laser (10% Ne - 90% He - $p = 3,2$ torrs - $i_c = 4$ mA)

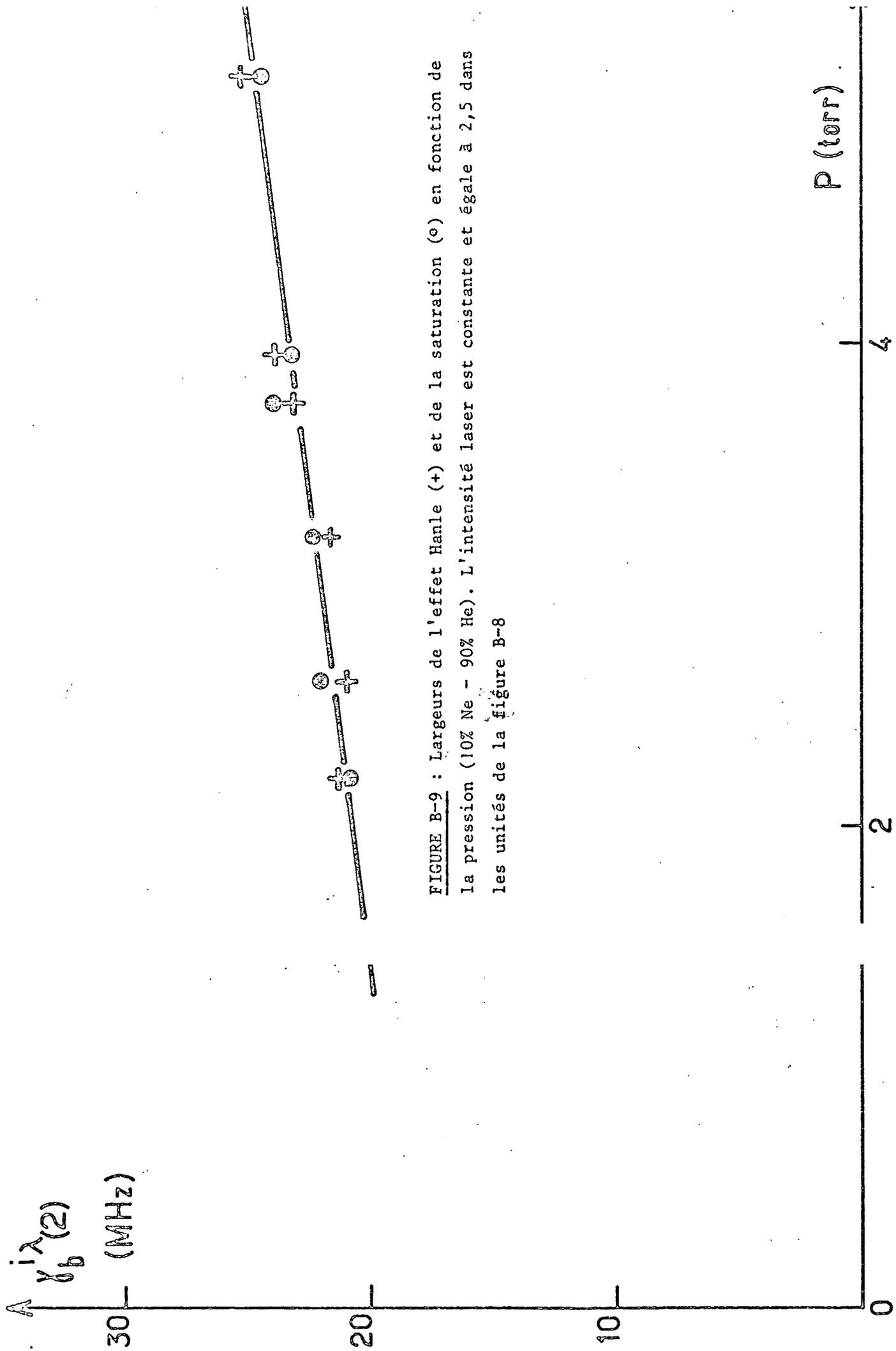
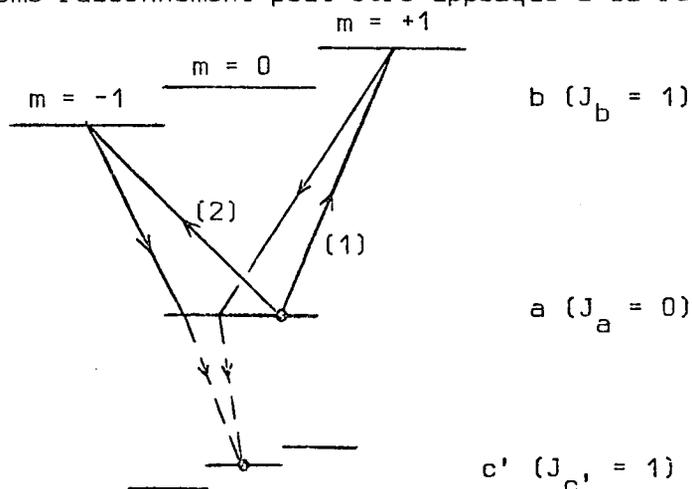


FIGURE B-9 : Largeurs de l'effet Hanle (+) et de la saturation (o) en fonction de la pression (10% Ne - 90% He). L'intensité laser est constante et égale à 2,5 dans les unités de la figure B-8

niveaux $m = +1$ et $m = -1$ ont la même énergie et les chemins (1) et (2) ont des amplitudes de probabilité importantes pour une même énergie des photons absorbés et réémis. L'amplitude de probabilité de diffusion totale A ($a \rightarrow b \rightarrow c$) est la somme des deux amplitudes A_1 et A_2 , et la probabilité de diffusion $P = |A|^2$ contient un terme d'interférence, $\text{Re}(A_1^* A_2)$. Ce terme d'interférence disparaît (et alors $P = |A_1|^2 + |A_2|^2$) quand les chemins (1) et (2) n'ont plus simultanément d'amplitudes de probabilité importantes, c'est-à-dire que le champ magnétique est tel que l'écart en énergie des sous-niveaux $m = \pm 1$ est supérieur à leur largeur naturelle. L'effet Hanle représente la variation avec le champ magnétique du terme d'interférence $A_1^* A_2$. Il apparaît dans la réponse linéaire puisqu'il ne fait intervenir qu'une interaction avec le laser.

Le même raisonnement peut être appliqué à la résonance de saturation.



Etudions la probabilité de diffusion de l'état a vers l'état c' après passage dans le niveau b , $P = |A(a \rightarrow b \rightarrow a \rightarrow c')|^2$. Là encore, il existe un terme d'interférence lié à l'existence de deux chemins possibles (1) et (2) pour le processus considéré. Comme dans le cas précédent, ce terme d'interférence, maximal en champ nul, disparaîtra quand l'écart en énergie des sous-niveaux $m = \pm 1$ deviendra supérieur à leur largeur naturelle. La résonance correspondante aura donc les mêmes variations avec le champ magnétique que l'effet Hanle. Par ailleurs, comme cette résonance fait intervenir deux interactions avec le laser, elle représente un phénomène essentiellement non-linéaire.

Le raisonnement précédent nous a permis de montrer simplement que les largeurs de l'effet Hanle et de la résonance de saturation étaient toutes deux reliées à la largeur naturelle du niveau $2s_2$ (en pratique, il s'agit ici du taux de relaxation de l'alignement transversal du niveau $2s_2$, puisque la polarisation

du laser est linéaire). Mais il faut aussi tenir compte du fait que dans les conditions expérimentales (pression partielle de néon supérieure à 1/10 torr), la raie de résonance $\lambda = 627 \text{ \AA}$ ($2s_2 - 1p_0$) est complètement réabsorbée dans la cellule. Cette réabsorption de la raie de résonance allonge la durée de vie du niveau $2s_2$ et diminue par suite de 9,6 MHz le taux de relaxation de l'alignement obtenu à l'aide de l'effet Hanle (voir réf. [1] et aussi le paragraphe II-1-c dans la suite). D'après nos résultats expérimentaux (fig. B-7 à B-9), cette diminution de la largeur naturelle est aussi observée sur la résonance de saturation. Or les effets non-linéaires nécessitent plusieurs interactions successives entre les atomes et le laser. Pour que la largeur de la résonance de saturation soit diminuée par la diffusion multiple, il faut que les atomes réexcités dans le niveau $2s_2$ par réabsorption d'un photon de résonance continuent d'interagir avec la raie laser. Puisque le processus de diffusion multiple change presque aléatoirement la vitesse des atomes excités, nous devons en déduire que, à la précision des mesures, tous les atomes interagissent avec le laser, indépendamment de leur vitesse. Ceci vérifie une des hypothèses fondamentales de la théorie "Broad-Line", à savoir que la réponse atomique est indépendante de la vitesse.

II.1.b. Elargissement radiatif de l'effet Hanle et amplitude de la résonance de saturation

L'égalité des largeurs de l'effet Hanle et de la résonance de saturation ayant été vérifiée, nous allons étudier les variations de cette largeur $\gamma_b^{i\lambda}(2)$ avec l'intensité du laser ainsi que les variations de la hauteur de saturation, \mathcal{S} (équation (B,21)).

Les variations expérimentales de $\gamma_b^{i\lambda}(2)$ et \mathcal{S} sont représentées sur la figure B-10. Pour comparer ces variations avec les prédictions théoriques, il faut d'abord déterminer la relation $\gamma(i_\lambda)$. Pour cela, il existe une grandeur très pratique, $[\gamma_b^{i\lambda}(2)]^2 \times (1 - \mathcal{S})$. En effet, à l'aide des relations II-36 et II-39, il est facile de montrer que

$$(1 - \mathcal{S}) [\gamma_b^{i\lambda}(2)]^2 = \Gamma_b(2) \left[\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{3} \right] \quad (\text{B,25})$$

On obtient une grandeur variant linéairement avec le taux de pompage, γ . Ses variations sont représentées sur la figure B-11. On voit que $(1 - \mathcal{S}) [\gamma_b^{i\lambda}(2)]^2$ varie à peu près linéairement avec l'intensité laser. γ est donc proportionnel à i_λ . ω est constant, ce qui indique que la section du faisceau laser et le nombre de modes ne dépendent pas de l'intensité. Dans les conditions de la figure B-11, on

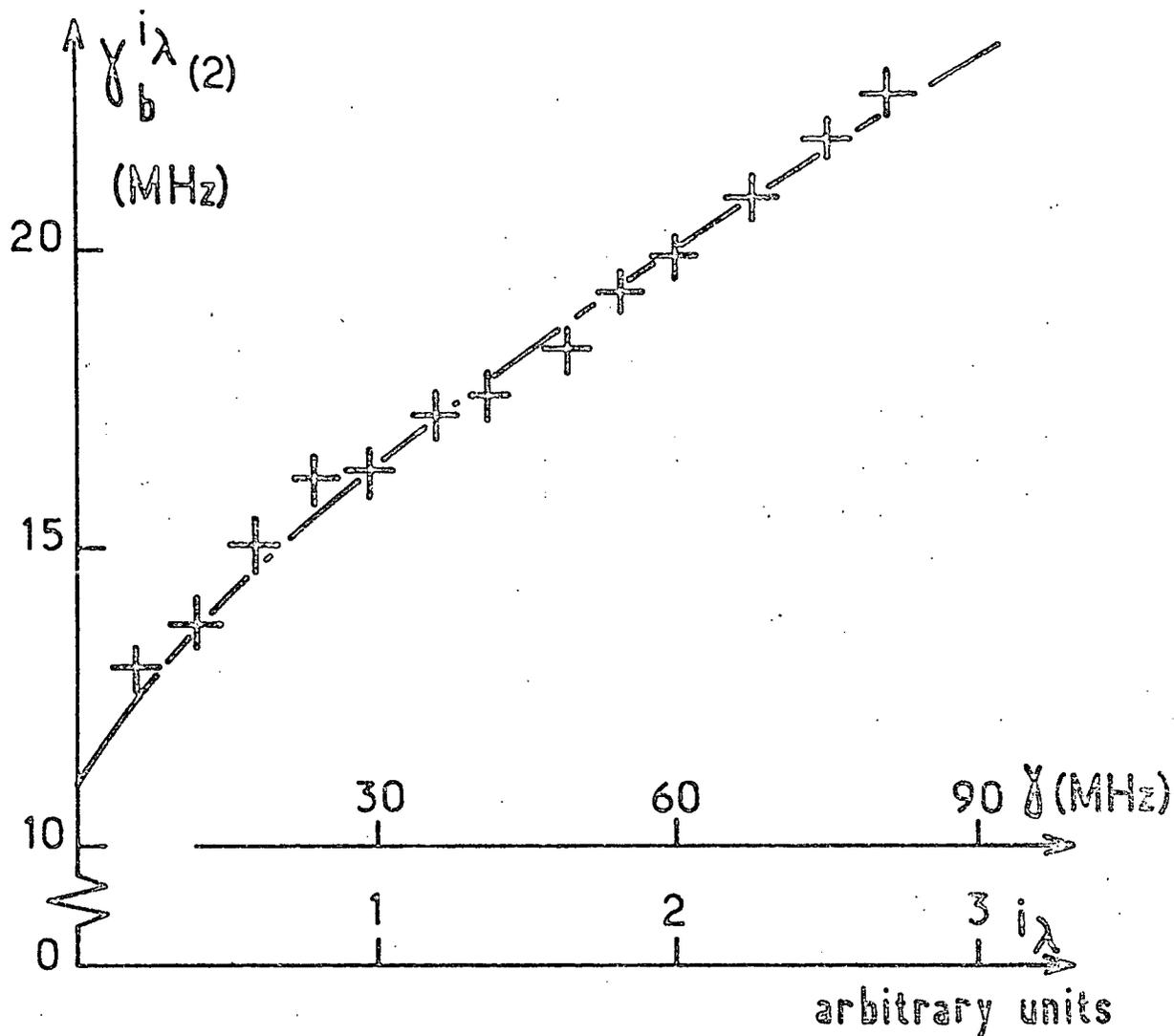


FIGURE B-10 : Variations de la largeur de l'effet Hanle (haut) et de la hauteur de saturation \mathcal{S} (bas) avec l'intensité laser (Ne 100% - p = 0,97 torr - $i_c = 6,8$ mA). Pour \mathcal{S} , les points (o) et les croix (x) correspondent à deux directions perpendiculaires de détection de la fluorescence. Les courbes sont théoriques avec les valeurs suivantes des paramètres $\Gamma_h(2) = 11$ MHz, $\eta = 4,7$ et $\gamma = 30 i_\lambda$.

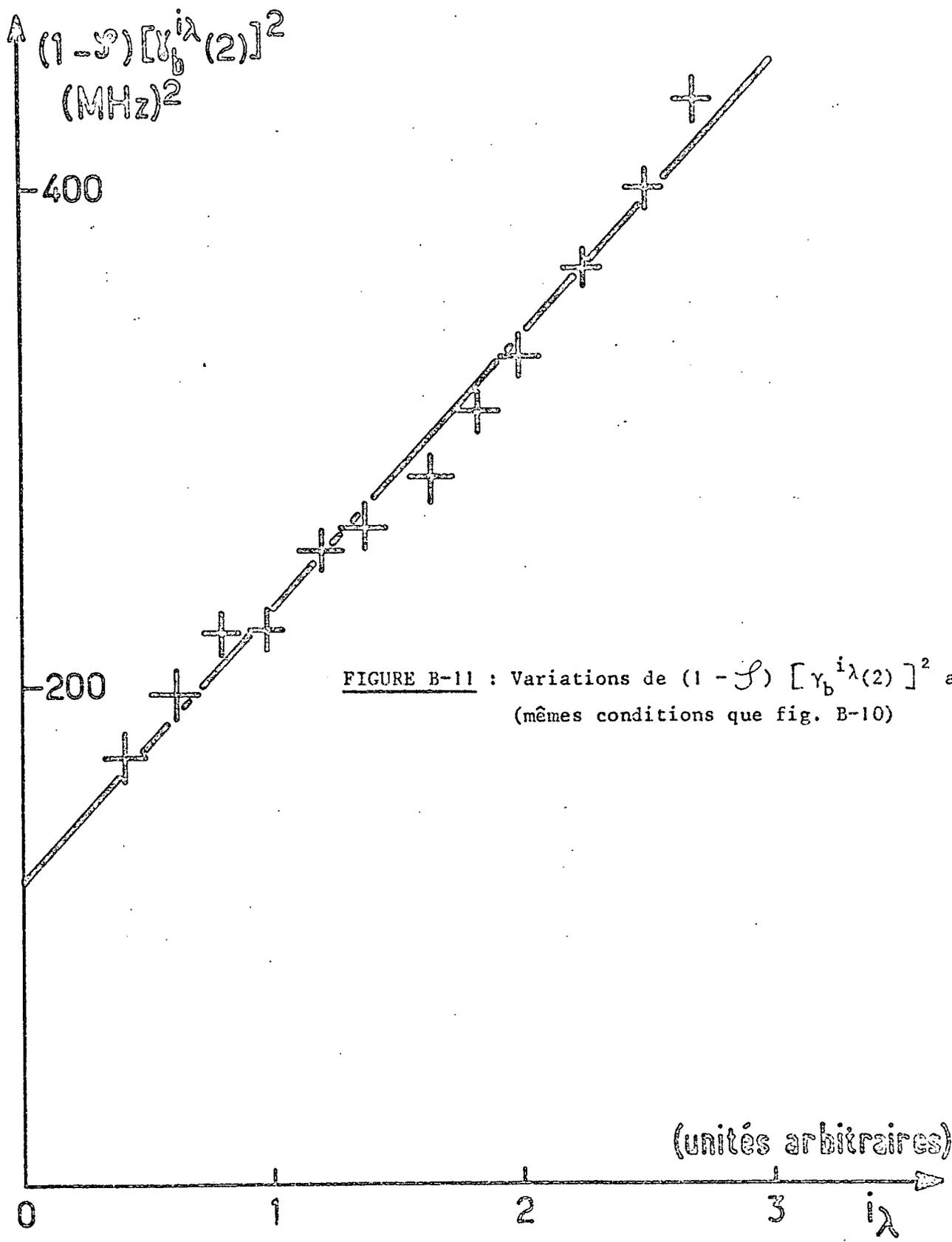


FIGURE B-11 : Variations de $(1 - S) [\gamma_b^{i_\lambda(2)}]^2$ avec i_λ
 (mêmes conditions que fig. B-10)

trouve $\Gamma_b(2) = 11 \pm 0,75$ MHz et $\frac{\gamma}{i_\lambda} = 30 \pm 3,4$ (en MHz par unité d'intensité laser). Il reste à déterminer η pour comparer les courbes théoriques aux points expérimentaux. Pour cela, on se sert de la relation suivante qui peut être réduite de II-39 (ou (B,13))

$$\frac{1}{\mathcal{S}} \cdot \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)} = 1 + (\eta + 1) \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)} \quad (B,26)$$

γ et $\Gamma_b(2)$ ayant été déterminés, on construit la quantité $\frac{1}{\mathcal{S}} \times \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)}$ dont on étudie les variations en fonction de $\frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)}$. Ces variations sont effectivement linéaires. Dans le cas expérimental de la figure B-10, on trouve pour une direction de détection (points (o) sur la figure B-10).

$$\frac{1}{\mathcal{S}} \cdot \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)} = (0,93 \pm 0,37) + (5,72 \pm 0,30) \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)}$$

et pour l'autre direction (croix (x) sur la figure B-10)

$$\frac{1}{\mathcal{S}} \cdot \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)} = (0,97 \pm 0,35) + (5,62 \pm 0,30) \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)}$$

Donc à la précision des mesures, l'origine est bien 1, et les pentes sont identiques pour les deux directions. On a représenté sur la figure B-10 les courbes théoriques correspondant à $\Gamma_b(2) = 11$ MHz, $\eta = 4,7$ et $\sqrt{i_\lambda} = 30$. Le dépouillement simultané de $\gamma_b^{i_\lambda(2)}$ et de \mathcal{S} permet donc d'obtenir le taux de relaxation de l'alignement du niveau $2s_2$, le rapport γ/i_λ et le paramètre η . Comme $\Gamma_b(2) / \Gamma_b(0)$ est déterminé à l'aide du taux d'anisotropie de la fluorescence du $2s_2$, on peut déduire de η (équ. (B,11)) une valeur du taux de relaxation du niveau $2p_1$ pondéré par un facteur dû au transfert par émission spontanée $2s_2 \rightarrow 2p_1$

$$\Gamma_a^*(0) = \Gamma_a(0) \left(1 - \frac{\gamma_{ba}}{\Gamma_b(0)}\right)^{-1} \quad (B,27)$$

Par exemple, dans le cas précédent, $\frac{\Gamma(2)}{\Gamma(0)} = 2,95$ et on trouve $\Gamma_a^*(0) = 9,07$ MHz pour $\eta = 4,72$ et $9,47$ MHz pour $\eta = 4,62$. Les résultats numériques obtenus seront discutés plus loin en fonction des conditions expérimentales.

Pour finir, nous discuterons du problème de la convergence de la théorie de perturbations. La hauteur de saturation, \mathcal{S} , obtenue à l'aide d'un développement de perturbations au 4ème ordre en fonction du champ électrique de l'onde laser est donnée par la tangente à l'origine de la courbe de la figure B-10, c'est-à-dire ${}^{(4)}\mathcal{S} = \gamma/3\Gamma_b(2)$. On voit qu'en fait \mathcal{S} est toujours très loin de cette valeur et beaucoup plus proche de sa valeur asymptotique $(\eta+1)^{-1} \approx 0,175$.

En pratique quand γ est inférieur à

$$\gamma_0 = \frac{3\Gamma_b(2)}{\eta + 1} \quad (B,28)$$

\mathcal{S} (équation (B,13)) s'exprime sous la forme d'une série

$$\mathcal{S} = (\eta+1)^{-1} \sum_p (-)^p \left(\frac{\gamma}{\gamma_0} \right)^{p+1} \quad (B,29)$$

Cette série représente le résultat de la théorie de perturbation usuelle (quand l'approximation "Broad Line" est vérifiée). On voit donc que le développement de perturbation n'est convergent que si $\gamma < \gamma_0$.

Dans le cas de la figure B-10, $\gamma_0 = 5,8$ MHz alors que γ peut atteindre 80 MHz : γ/γ_0 peut être aussi grand que 14 ! Dans ce cas, un développement de perturbation n'est donc pas adapté à une étude quantitative des effets non linéaires

II.1.c. Relaxation de l'alignement du niveau $2s_2$

Les variations de $\Gamma_b(2)$ avec la pression de néon sont montrées sur la figure B-12. On obtient :

$\Gamma_b(2) = \gamma_b(2) + g_b(2).p$	
avec.	$\gamma_b(2) = 7,77 \pm 1 \text{ MHz}$
	$g_b(2) = 3,20 \pm 0,23 \text{ MHz/torr}$

(B,30)

La valeur de $\gamma_b(2)$ est en accord avec celle de DECOMPS ($8,4 \pm 0,4$ MHz), mais ce n'est pas le cas pour $g_b(2)$ (DECOMPS a trouvé $3,87$ MHz/torr).

DECOMPS a montré que dans le néon, la raie de résonance à 627 \AA était entièrement réabsorbée. A cause de la diffusion multiple, la valeur de $\frac{\Gamma_b(2)}{\Gamma_b(0)}$ extrapolée à pression nulle n'est pas égale à 1, mais à :

$$\frac{\gamma_b(2)}{\gamma_b(0)} = \frac{1 - 0,7 \lambda}{1 - \lambda} \quad (B,31)$$

où λ est le rapport de branchement de la raie de résonance.

Dans le néon, DECOMPS avait trouvé $\frac{\gamma_b(2)}{\gamma_b(0)} = 2,14 \pm 0,20$ et $\lambda = 0,79 \pm 0,0$

Avec cette valeur de λ et notre mesure (B,30), on trouve pour la largeur naturelle γ_b , la durée de vie τ et la probabilité de transition $2s_2 \rightarrow 1p_0$, Γ :

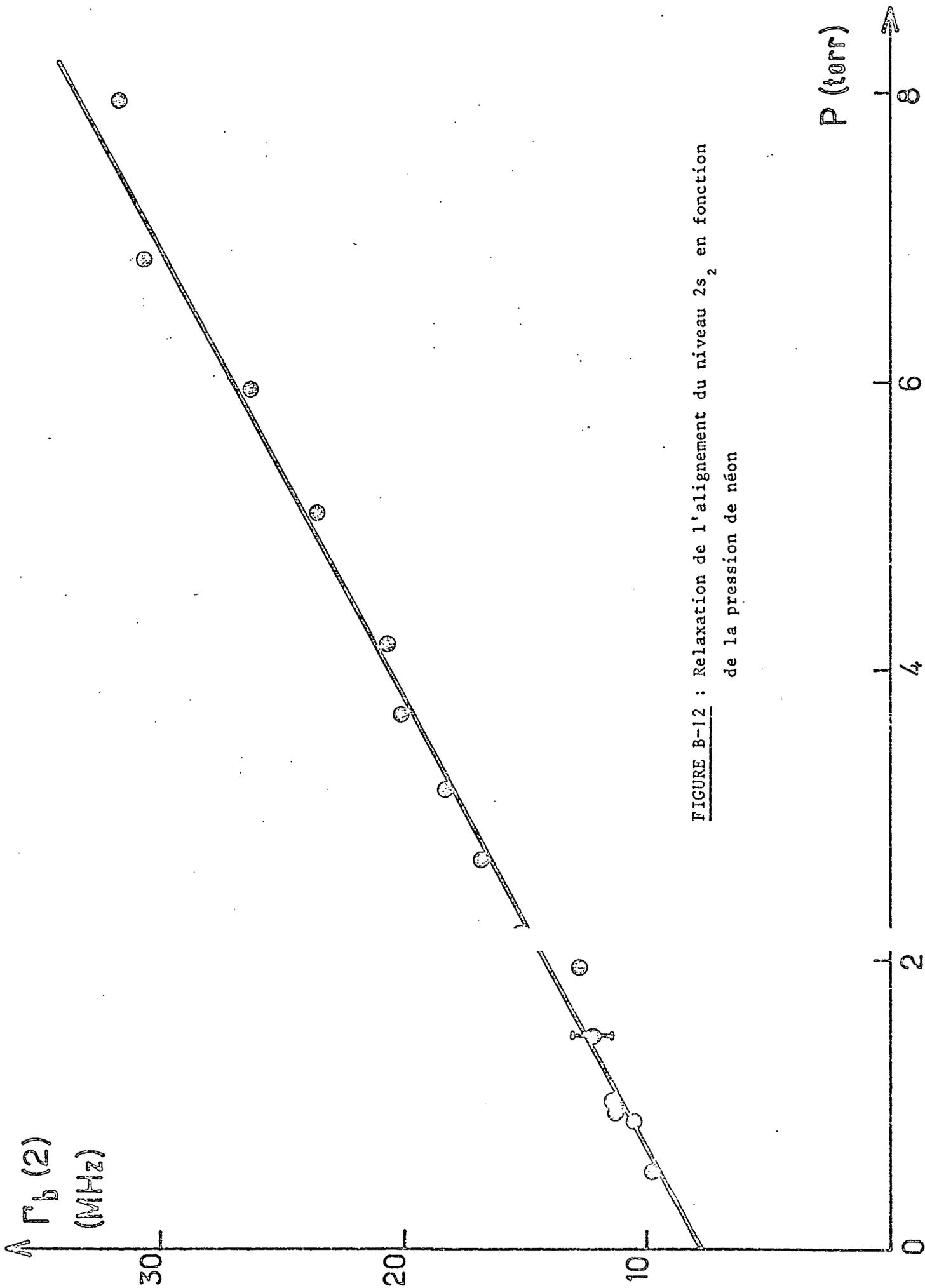


FIGURE B-12 : Relaxation de l'alignement du niveau $2s_2$ en fonction de la pression de néon

$\gamma_b = 17,4 \pm 3 \text{ MHz}$	(B,32)
$\tau = 9,14 \pm 1,7 \text{ ns}$	
$\Gamma = \lambda\gamma_b = 13,8 \pm 3 \text{ MHz}$	

Le tableau suivant permet de comparer les valeurs obtenues (exprimées en unités de 10^6 s^{-1}) avec des mesures antérieures ainsi que des déterminations théoriques

		$\gamma_b(0) = \gamma_b - \Gamma$	$\gamma_b(2) = \gamma_b - 0,7\Gamma$	Γ	γ_b
théorie	KLOSE [27]	27,3	53,7	88	115,3
	CRANCE [6]	26,7	46,8	66,9	93,6
expér.	LAWRENCE [13] et al				128,5 ± 13,3
	Présent travail	22,9 ± 5,1	48,8 ± 6,3	86,5 ± 18,8	109,4 ± 18,8

Les deux études théoriques donnent la même valeur pour les processus radiatifs sur les raies de fluorescence autres que la raie de résonance ($\gamma_b(0)$) mais diffèrent sensiblement pour la probabilité de transition de la raie de résonance (Γ). Les résultats expérimentaux semblent indiquer que la méthode de KLOSE [27] (couplage intermédiaire et approximation de HARTREE-FOCK-SLATER) pour le calcul de Γ est mieux adaptée.

II.1.d. Relaxation de la population du niveau $2p_1$

Les variations de $\Gamma_a^*(0)$ avec la pression de néon sont reportées sur la figure B-13. $\Gamma_a^*(0)$ est constant à la précision des mesures (la pente $g_a(0)$, calculée par moindres carrés est égale à $0,08 \pm 0,20 \text{ MHz/torr}$). L'absence de collisions de quenching s'explique par l'écart énergétique important entre le niveau $2p_1$ et les autres niveaux du néon (le niveau $2p_2$ est distant de 2000 cm^{-1} , c'est-à-dire 10 quanta thermiques). Si on néglige la correction due au transfert par émission spontanée (*), on trouve pour la largeur naturelle γ_a et la durée de vie τ du niveau $2p_1$

(*) On peut montrer que le facteur correctif est toujours inférieur à 4%, lorsqu'on utilise la valeur théorique de la probabilité de transition $2s_2 \rightarrow 1p_0$ qui est $0,15 \text{ MHz [6]}$

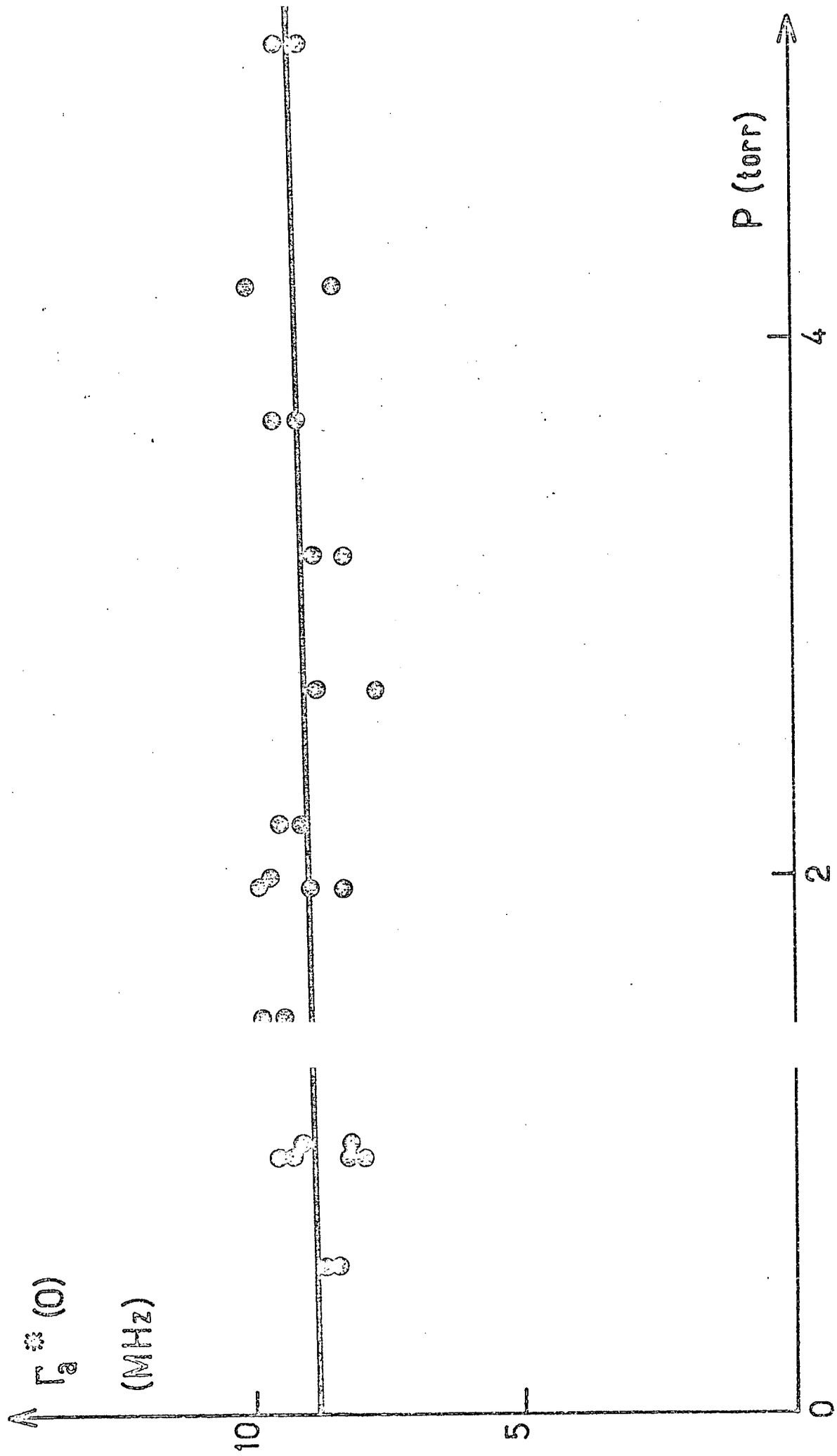


FIGURE B-13 : Relaxation de la population du niveau $2p_1$ en fonction de la pression de néon

$$\gamma_a = 8,85 \pm 1,25 \text{ MHz}$$

$$\tau = 18 \pm 3 \text{ ns}$$

(B,33)

La durée de vie obtenue est plus longue que celle obtenue par d'autres méthodes ("coïncidence retardée" : 14,7 ns KLOSE [7], 14,4 ns BENNETT et al [8] ou "beam-foil spectroscopy" 14,5 ns DENIS et al [9]). Nous pensons que ce désaccord doit être dû à une réabsorption partielle des raies de fluorescence du niveau $2p_1$ dans la cellule que nous utilisons, les niveaux de résonance $1s_2$ et $1s_4$ devant être très peuplés (*).

III.1.e. Taux de pompage de la raie laser $\lambda = 1.52 \mu$

Un des points importants de la théorie est que le taux de pompage, γ , (équations (B,3) à (B,9)) ne dépend pas des conditions expérimentales (pression, nature du mélange, intensité de la décharge), lorsque l'approximation "Broad-Line" est valable. On a en effet vérifié que le rapport γ/i_λ est indépendant de la pression (figure B-14). L'élargissement $\gamma/3$ (pente à l'origine de l'élargissement radiatif de l'effet Hanle) est donc indépendant des conditions expérimentales. Théoriquement, l'élargissement réel dépend aussi de $\Gamma(2)$ et donc des conditions expérimentales (équ. II-36). Cependant, on trouve qu'en pratique l'élargissement expérimental ne dépend pas de la pression du mélange He-Ne (voir figure B-15). Pour exprimer ce résultat, considérons la largeur théorique de l'effet Hanle (équation II-36).

$$\gamma_b^{i\lambda(2)} = (\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{3}) \left\{ 1 - \frac{\eta\gamma^2}{9(\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{3})(\Gamma_b(2) + \frac{\eta\gamma}{3})} \right\}^{1/2} \quad (B,34)$$

Si on fait un développement limité de la racine carrée, on trouve

$$\gamma_b^{i\lambda(2)} \approx (\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{3}) \left[1 - \frac{\eta\gamma^2}{18(\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{3})(\Gamma_b(2) + \frac{\eta\gamma}{3})} \right] \quad (B,35)$$

d'où

$$\gamma_b^{i\lambda(2)} - \Gamma_b(2) \approx \frac{\gamma}{3} - \frac{\eta\gamma^2}{18(\Gamma_b(2) + \frac{\eta\gamma}{3})} \quad (B,36)$$

(*) En théorie, l'étude de cette réabsorption pourrait être réalisée à basse pression de néon, dans un mélange He-Ne. Mais le rapport signal sur bruit n'est pas favorable.

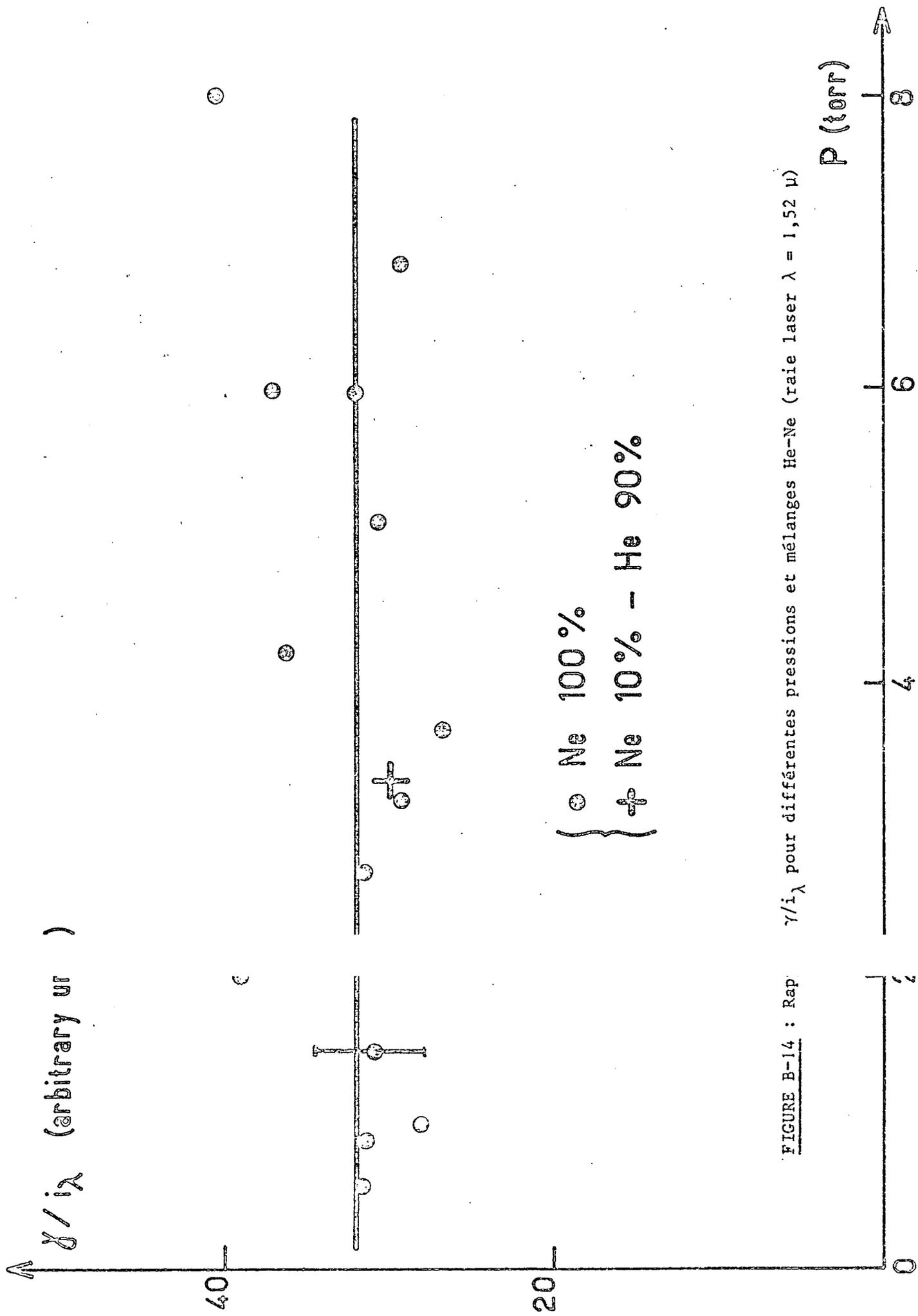


FIGURE B-14 : Rap. γ/i_λ pour différentes pressions et mélanges He-Ne (raie laser $\lambda = 1,52 \mu$)

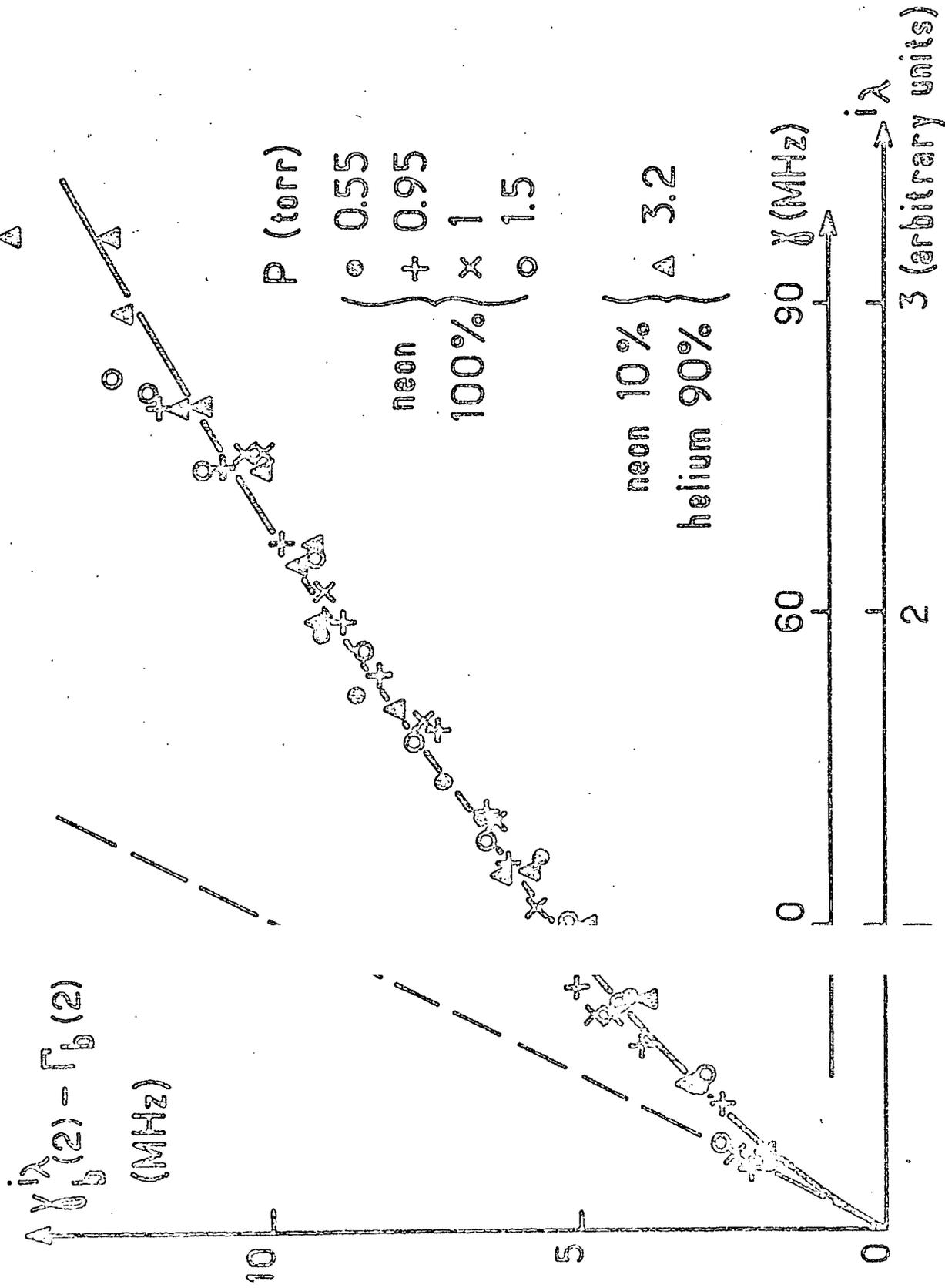


FIGURE B-15 : Elargissement rad à l'origine, $\gamma/3$

FIGURE B-15 : Elargissement rad à l'origine, $\gamma/3$

Pour la raie à $1,52 \mu$, $\frac{\Gamma(2)}{\Gamma(0)}$ est toujours supérieur à 3, quand la raie de résonance est complètement réabsorbée dans le gaz. Le facteur $1/3$ dans η (éq. (B,12)) peut alors être négligé et on a :

$$\eta \approx \frac{2\Gamma_b(2)}{3\Gamma_b(0)} + \frac{2\Gamma_b(2)}{\Gamma_a^*(0)} \quad (B,37)$$

Dans ce cas, le second membre de (B,36) ne dépend seulement que de $\Gamma_b(0)$ et $\Gamma_a^*(0)$. $\Gamma_a^*(0)$ est indépendant de la pression (figure B-13). Par ailleurs, DECOMPS [1] a montré que les collisions de quenching étaient très faibles dans le niveau $2s_2$. Ceci explique pourquoi $\gamma_b^{i\lambda}(2) - \Gamma_b(2)$ est indépendant de la pression. On a représenté sur la figure B-15 la courbe théorique déduite de l'expression (B,36).

II.2 - Transition $3s_2 - 2p_1$ ($\lambda = 7305 \text{ \AA}$)

Nous avons entrepris l'analyse de la raie laser $\lambda = 7305 \text{ \AA}$ pour étudier plus précisément deux points :

- 1) La relaxation du niveau $3s_2$. B. DECOMPS [1] a étudié la relaxation de la population et de l'alignement du niveau $3s_2$ avec un montage similaire au nôtre (cellule à l'intérieur de la cavité. Polarisation linéaire). Par ailleurs, M. DUMONT [10] a étudié la relaxation de l'orientation du niveau $3s_2$ avec un montage où la cellule de pompage se trouvait à l'extérieur de la cavité et le laser ($\lambda = 6328 \text{ \AA}$; $3s_2 \rightarrow 2p_4$) avait une polarisation circulaire. Or leurs résultats sont différents. Comme DUMONT diminuait l'intensité laser à l'aide d'un atténuateur à échelons, on peut supposer que sa méthode d'extrapolation des mesures à intensité nulle était plus "propre". Pour cette raison, il nous a semblé important de reprendre les mesures de DECOMPS en effectuant les extrapolations nécessaires compte tenu des effets non-linéaires.
- 2) La relaxation du niveau $2p_1$. Il était par ailleurs intéressant de déduire de la réponse non-linéaire du néon à la raie $\lambda = 7305 \text{ \AA}$ une nouvelle mesure du taux de relaxation du niveau $2p_1$ et de le comparer avec celui obtenu à l'aide de la raie $\lambda = 1,52 \mu$. En pratique, cette mesure s'est révélée impossible à cause des faibles taux de saturation obtenus. En effet $\Gamma_a(0)$ est déduit du paramètre η , lequel est essentiellement déterminé par la valeur asymptotique de $\mathcal{S}, (\eta+1)^{-1}$ (*).

(*) Dans un développement de \mathcal{S} ou de $\gamma_b^{i\lambda}(2)$ en fonction de γ , η apparaît seulement dans le coefficient du terme en γ^2 , ce qui correspond à la contribution du 6ème ordre dans un développement de perturbations de la réponse atomique.

Or nous verrons (figure B-17) que le taux de pompage est toujours inférieur à 4 MHz alors que γ_0 (équation (B,28)) est égal à 4,8 MHz si $\Gamma_b(2) = 6,6$ MHz et $\eta = 3,1$ (valeurs correspondant à 1,1 torr de néon; cf. figure B-16). γ/γ_0 ne dépasse donc pas 0,8 alors que pour la raie $\lambda = 1,52 \mu$, γ/γ_0 pouvait atteindre 14. C'est pour cette raison qu'il s'est révélé impossible de mesurer directement η pour la raie $\lambda = 7305 \text{ \AA}$

L'étude des effets non-linéaires sur cette raie a été compliquée par une difficulté supplémentaire liée au fait que γ n'était pas proportionnel à i_λ . La figure B-16 montre l'élargissement radiatif de l'effet Hanle du niveau $3s_2$ et la hauteur de la résonance de saturation du niveau $2p_1$. Il n'est pas possible d'adapter les courbes théoriques aux points expérimentaux si on suppose γ proportionnel à i_λ . En particulier, la quantité $[\gamma_b^{i_\lambda(2)}]^2 \times (1 - \mathcal{P})$ ne varie pas linéairement avec i_λ . On ne peut donc pas déterminer $\Gamma_b(2)$ en utilisant la même méthode qu'au paragraphe II-1-b (étude par moindres carrés de $[\gamma_b^{i_\lambda(2)}]^2 (1 - \mathcal{P})$). Par ailleurs, l'extrapolation directe de la largeur de l'effet Hanle à intensité laser nulle (méthode employée par DECOMPMS [1]) est peu précise car le rapport signal sur bruit est très mauvais à faible intensité.

La méthode que nous avons employée a été de calculer la valeur de η à partir du rapport $\Gamma_b(2) / \Gamma_b(0)$ déterminé par l'anisotropie des raies de fluorescence, de la valeur de $\Gamma_a(0)$ obtenue par l'irradiation à $1,52 \mu$ et d'une première détermination approchée de $\Gamma_b(2)$ (largeur extrapolée de l'effet Hanle). η étant connu, pour chaque valeur de i_λ , on déduit de \mathcal{P} (B,13) une détermination de $\frac{\gamma}{\Gamma_b(2)}$ qui, reportée dans l'expression de $\gamma_b^{i_\lambda(2)}$ (équation (B,34)) permet d'obtenir directement $\Gamma_b(2)$ à partir de la mesure de $\gamma_b^{i_\lambda(2)}$. Cette valeur peut être reportée dans (B,12) pour permettre une détermination plus précise de η avec laquelle on peut refaire les calculs précédents si nécessaire. Un des points essentiels est que la valeur de $\Gamma_b(2)$ obtenue ne dépend pas de i_λ (voir fig. B-16 : dans ce cas, $\Gamma_b(2) = 6,60 \pm 0,10$ MHz). Ceci montre que les résultats expérimentaux peuvent être interprétés par les formules théoriques (B,13) et (B,34), à l'aide du seul taux de pompage, γ , bien que celui-ci ne varie pas proportionnellement à i_λ .

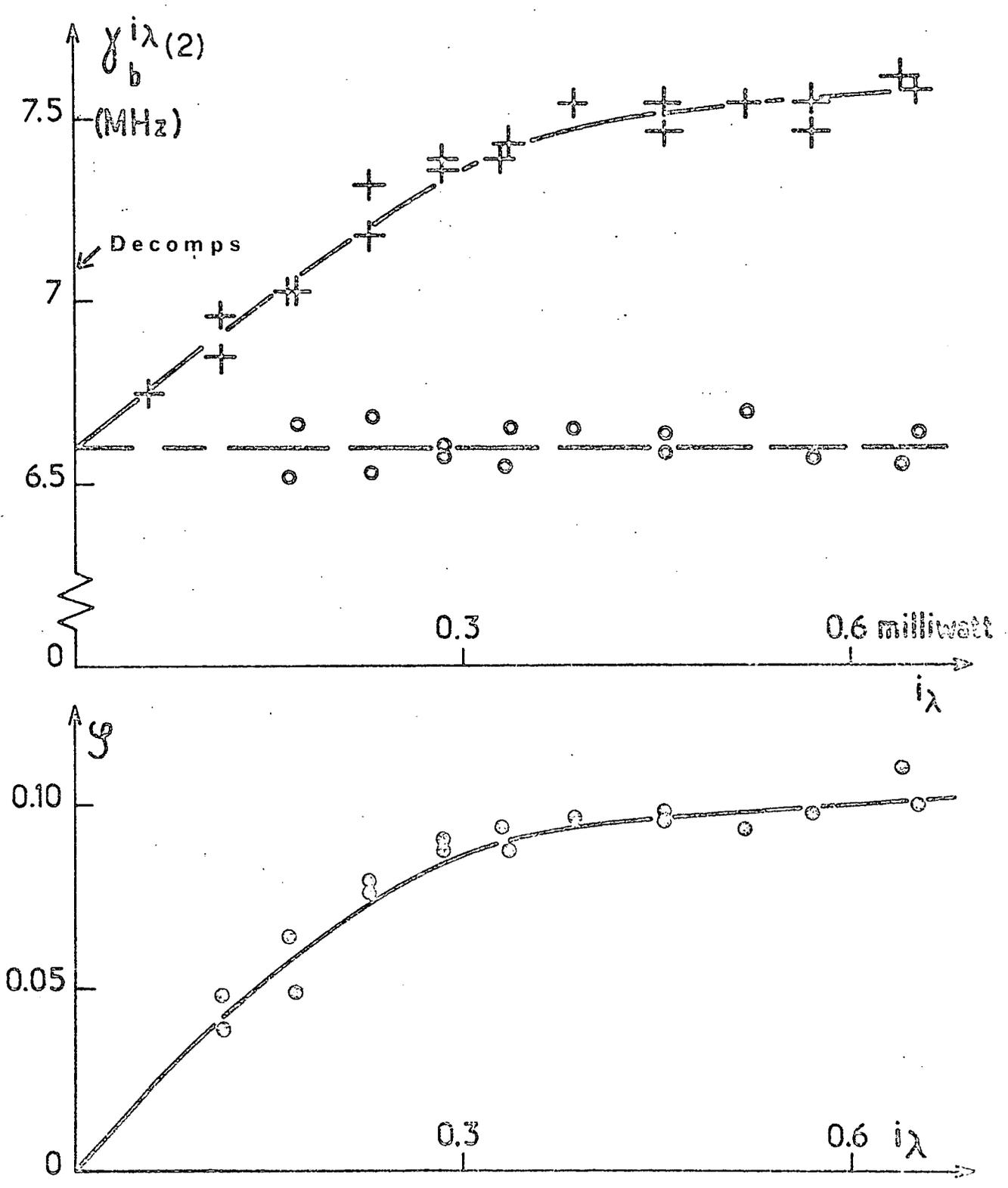


FIGURE B-16 : Largeur de l'effet Hanle du niveau $3s_2$ (croix - courbe du haut) et hauteur de saturation du niveau $2p_1$ (points - courbe du bas) en fonction de l'intensité de la raie laser à 7305 Å. Les ronds donnent le taux de relaxation de l'alignement du niveau $3s_2$ déduit de la comparaison de $\gamma_b^{i\lambda(2)}$ et de S (pression de néon 1,1 torr - $i_c = 7$ mA).

II.2.a. Taux de pompage de la raie $\lambda = 7305 \text{ \AA}$

Les variations de γ avec i_λ sont reportées sur la figure B-17. Comme prédit par la théorie, γ ne dépend pas de la composition du mélange He-Ne, ni de la pression. Par contre, γ ne varie pas linéairement avec i_λ . Pour expliquer les variations de γ avec i_λ , il faut étudier le mode de fonctionnement du laser, et les variations corrélées de la section du faisceau. Il existe deux modes de fonctionnement :

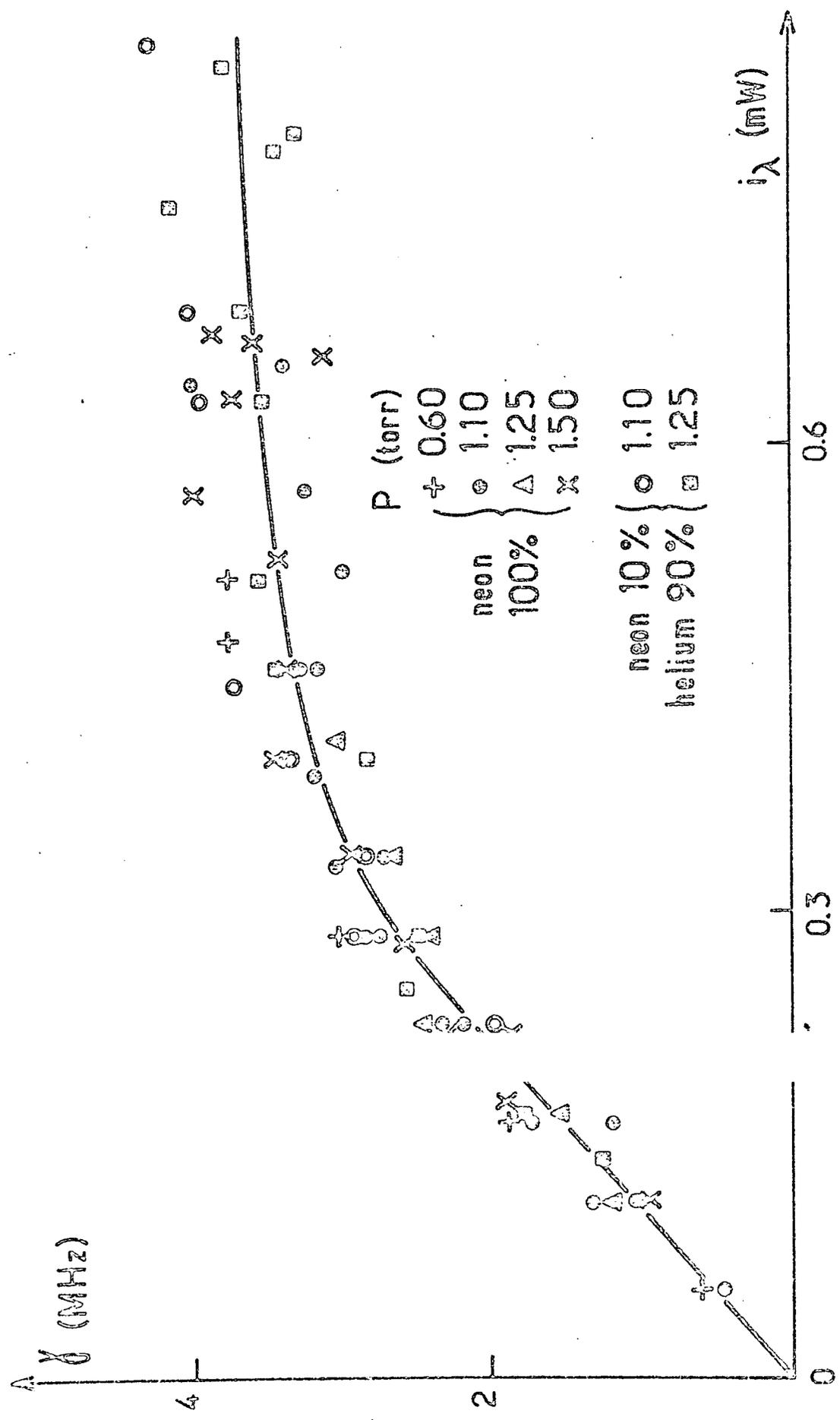
- (i) Quand i_λ est inférieur à 0,3 mW, la cavité oscille sur des modes axiaux TEM_{00} (notation de FOX et LI [1]). Dans ces conditions de fonctionnement, la section du faisceau est constante et γ est proportionnel à i_λ .
- (ii) Quand i_λ devient supérieur à 0,3 mW, le rayonnement a tendance à occuper de façon plus complète le milieu amplificateur, ce qui entraîne l'apparition de modes obliques TEM_{10} . La répartition d'intensité prend une forme annulaire. La création de modes obliques entraîne que la section du faisceau augmente avec l'intensité du laser : la densité d'énergie lumineuse devient constante (de l'ordre de 20 W/cm² au niveau de la cellule) et, par suite, le taux de pompage ne dépend plus de l'intensité (palier pour $\gamma = 3,6 \pm 0,5$ MHz sur la figure B-17) (*)

Pour vérifier les formules (B,6) et (B,9) donnant le taux de pompage, nous avons mesuré le facteur de transmission du miroir laser ($T = 2,73 \pm 0,15 \%$) et le nombre de modes axiaux N par une analyse spectrale de la raie laser. Nous avons trouvé que N était à peu près constant (N varie entre 10 et 13 lorsqu'on fait varier l'intensité laser). Nous avons aussi étudié la section du faisceau à l'aide d'un diaphragme réglable, de façon à déterminer la densité spatiale de la puissance de sortie, $p = i_\lambda / s$. Il suffit alors de déterminer la probabilité d'émission spontanée, γ_{ba} , sur la transition $3s_2 \rightarrow 2p_1$ pour obtenir la relation entre γ et p.

(*) On peut se demander pourquoi ce changement du mode d'oscillation de la cavité arrive avec la raie $\lambda = 7305 \text{ \AA}$ et apparemment pas avec la raie $\lambda = 1,52 \mu$. Une première explication possible réside dans le type de miroirs laser utilisés : alors que pour la raie $\lambda = 1,52 \mu$, le rayon de courbure des miroirs était de 2 m. (pour une longueur de cavité de 1,80 m), pour la raie $\lambda = 7305 \text{ \AA}$, nous avons utilisé des miroirs de 1,50 m. Cette forte courbure doit favoriser l'apparition de modes transverses. Par ailleurs, la diffraction étant deux fois plus forte à 1,52 μ qu'à 7305 \AA , l'encombrement spatial des modes de la cavité est deux fois plus fort à 1,52 μ . Pour cette raie, le faible diamètre du tube amplificateur (3 mm) doit alors empêcher l'oscillation de la cavité sur des modes transverses.

FI
po
0,
à
pr
en

B-17 : Taux de pompage en fonction de l'intensité de la raie laser à 7305 Å, =
différentes pressions. On a porté la courbe théorique correspondant à $\gamma_{3s_2 \rightarrow 2p_1}$
Hz. La dispersion des points expérimentaux est essentiellement reliée
à anque de contrôle de l'état de la cavité laser (faces de Brewster plus ou moins
s, variations des conditions de décharge dans le tube amplificateur) qui peut
ner, à intensité laser donnée, des variations de γ d'une expérience à l'autre.



Nous trouvons que l'accord entre l'expression théorique et les résultats expérimentaux est réalisé pour la valeur suivante de γ_{ba} :

$$\gamma_{ba} = 0,05 \pm 0,02 \text{ MHz} \quad (\text{B},38)$$

La barre d'erreur tient compte de la dispersion des points expérimentaux et de l'incertitude sur la mesure du nombre de modes et de la section du faisceau. Cette valeur de γ_{ba} est en bon accord avec la détermination théorique de la probabilité de transition $3s_2 \rightarrow 2p_1$ ($5,2 \cdot 10^{-2}$ MHz, cf. réf. [6]) (*).

Revenons de façon plus précise sur les différents régimes d'oscillation de la cavité.

- (i) Quand la cavité oscille en mode axial TEM₀₀, la section du faisceau est constante et la densité d'énergie est proportionnelle à l'intensité laser : les variations d'intensité sont alors essentiellement des variations de densité d'énergie. Comme par ailleurs l'intensité d'irradiation est assez faible pour que la réponse atomique soit quasi-linéaire, les modifications de fluorescence sont proportionnelles aux modifications d'intensité laser.
- (ii) Quand les modes transverses apparaissent, la densité d'énergie est constante et le volume du faisceau augmente avec l'intensité : les variations d'intensité sont alors reliées aux variations de volume. Dans ce cas, les modifications de fluorescence sont proportionnelles aux modifications de volume irradié, c'est-à-dire qu'elles sont encore reliées linéairement aux modifications d'intensité laser.

Ces arguments qualitatifs expliquent pourquoi on trouve expérimentalement (fig. B-18) que la modification de fluorescence varie à peu près linéairement avec

(*) L'écart très important constaté entre les valeurs maxima de γ obtenues pour la raie $\lambda = 1,52 \mu$ ($\gamma_M \sim 90$ MHz) et pour la raie $\lambda = 7305 \text{ \AA}$ ($\gamma'_M \sim 3,6$ MHz) provient pour l'essentiel de la valeur des éléments de matrice du dipôle optique. En effet γ est proportionnel à $|P_{ab}|^2$, donc à $\lambda^3 \gamma_{ba}$. Si on suppose que la densité d'énergie lumineuse au niveau de la cellule est identique pour les deux raies, on a :

$$\frac{\gamma(1,52 \mu)}{\gamma(0,7305 \mu)} = \left(\frac{1,52}{0,73} \right)^3 \cdot \frac{\gamma_{2s_2 \rightarrow 1p_0}}{\gamma_{3s_2 \rightarrow 1p_0}}$$

En prenant pour le rapport des probabilités de transition la valeur théorique 2,8 [6], on obtient

$$\frac{\gamma(1,52)}{\gamma(0,73)} \approx 25 \approx \frac{\gamma_M}{\gamma'_M}$$

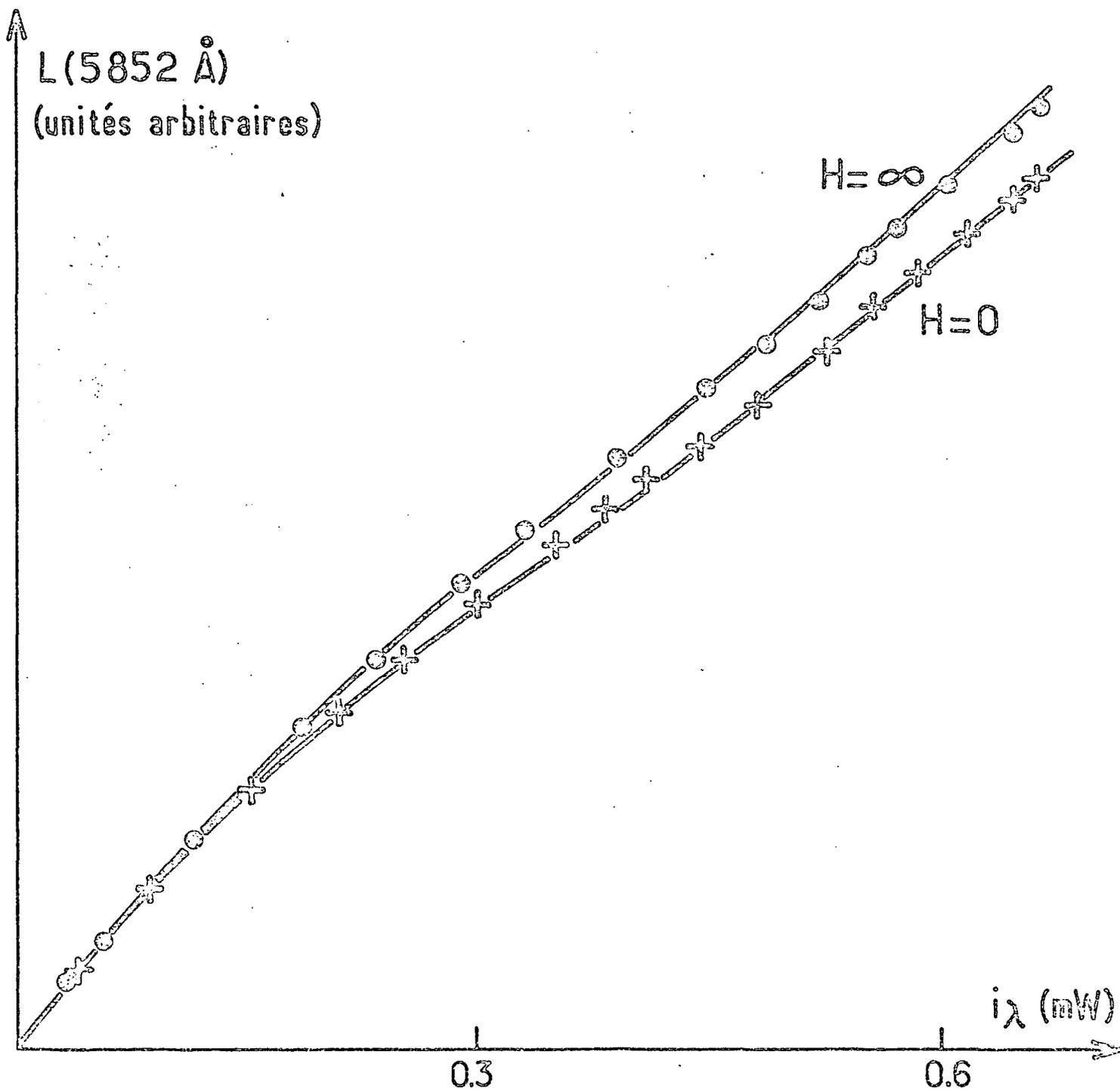


FIGURE B-18 : Modification de fluorescence du niveau $2p_1$ induite par le laser à 7305 Å (1% Ne - 99% He - $p = 2$ torrs - $i_c = 6,7$ mA). Les courbes sont les courbes théoriques correspondant à $\Gamma_b(2) = 10,10$ MHz et $\eta = 2,95$ (voir texte)

l'intensité laser. Cette propriété peut être justifiée à l'aide d'un calcul plus précis.

L'intensité de la fluorescence du niveau $2p_1$ est obtenue à partir des formules (B,6), (B,11) et (B,16) :

$$L(H) = \frac{2n \omega V_d i_\lambda}{3\Gamma_a^*(0) \left[1 + \eta \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)} \right]} \left\{ 1 - \mathcal{S}_B L_2^2(H) \right\} \quad (B,39)$$

Si on suppose que le volume détecté par le photomultiplicateur, V_d , représente tout le volume irradié sur une longueur ℓ de la décharge (hypothèse justifiée par la grande largeur des fentes d'entrée des monochromateurs), alors on a :

$$V_d = \ell S \quad (B,40)$$

Comme ω est proportionnel à $1/S$ (B,9), la constante

$$C = \frac{2n \omega V_d}{3\Gamma_a^*(0)} \quad (B,41)$$

est indépendante de i_λ .

On a

$$L(\infty) = \frac{C i_\lambda}{1 + \eta \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)}} \quad (B,42)$$

et

$$L(0) = \frac{C i_\lambda}{1 + (\eta+1) \frac{\gamma}{3\Gamma_b(2)}} \quad (B,43)$$

$\Gamma_b(2)$, η et γ ayant été mesurés par ailleurs, il suffit de déterminer C pour vérifier si les expressions (B,42) et (B,43) décrivent bien les variations expérimentales de la fluorescence à 5852 Å. Les courbes théoriques sont reportées sur la figure B-18, la constante C ayant été déterminée à partir d'un seul point expérimental. Les variations de la fluorescence, linéaires à faible intensité laser, s'incurvent légèrement à 0,3 mW à cause de l'apparition des effets de saturation, puis repartent linéairement quand le taux de pompage, γ , devient constant. Ce comportement confirme les idées intuitives énoncées plus haut.

Cette relation quasi-linéaire entre les intensités de la fluorescence et du laser existe évidemment aussi entre les fluctuations de ces deux grandeurs et a été mise à profit dans l'étude de la résonance de saturation du niveau $2p_1$. En effet, la raie laser $\lambda = 7305$ Å présente des fluctuations d'intensité relativement

importantes qui se retrouvent sur la fluorescence à 5852 Å (*). Comme la hauteur de saturation \mathcal{S} est, au maximum, de l'ordre de 1/10, ces fluctuations se retrouvent dix fois plus intenses sur la résonance de saturation (courbe I de la figure B-19). Pour les éliminer, nous avons formé électroniquement, à partir de l'intensité laser, un signal αi_λ égal à la composante de la fluorescence indépendante du champ magnétique $L(\infty)$ [équation (B,42)], et ensuite nous avons opposé, à l'entrée de la détection synchrone, ce signal à la modulation de fluorescence induite par le laser, $L(H)$. De cette façon, la résonance de saturation apparaît sur "fond noir" (après la détection synchrone), et le bruit est réduit par un facteur de l'ordre de 10 (courbe II de la figure B-19) correspondant à l'élimination des fluctuations de la composante indépendante du champ. Cette technique a été systématiquement employée pour la détermination de la largeur de la résonance de saturation.

II.2.b. Etude de la relaxation du niveau $3s_2$

Nous allons maintenant présenter l'étude de la relaxation du niveau $3s_2$ utilisant la méthode décrite au début du chapitre (voir figure B-16). Comme il est montré sur cette figure, le taux de relaxation obtenu est nettement inférieur à la valeur mesurée par B. DECOMPS [1]. Nous pensons que ceci doit s'interpréter par une sous-estimation par DECOMPS de l'élargissement radiatif de l'effet Hanle. En effet, pour extrapoler la largeur de l'effet Hanle, DECOMPS a supposé que $\gamma_b^{i\lambda}(2)$ variait linéairement avec i_λ (figure 8-IV de la réf. [1]), ce qui n'est en fait pas le cas. Comme le rapport signal sur bruit est mauvais à faible intensité laser, cette linéarisation de l'élargissement radiatif a dû être réalisée au détriment des points expérimentaux mesurés à faible intensité, ce qui entraînerait une surestimation du taux de relaxation de l'alignement. Nous avons mesuré $\Gamma(2)$ en fonction de la pression et du courant de décharge. $\Gamma_b(2)$ présente dans le néon pur un élargissement avec l'intensité de la décharge qui est de l'ordre de 42 KHz/ mA/torr. Les variations de $\Gamma_b(2)$ en fonction de la pression de néon, après extrapolation à intensité de décharge nulle, sont reportées sur la figure B-20. On trouve :

avec

$\Gamma_b(2) = \gamma_b(2) + g_b(2) p$	(B,44)
$\gamma_b(2) = 3,80 \pm 0,14 \text{ MHz}$	
$g_b(2) = 2,27 \pm 0,07 \text{ MHz/torr}$	

Ces valeurs doivent être comparées avec celles de DECOMPS (droites en pointillés de la figure B-20) qui sont $\gamma_b(2) = 4,22 \text{ MHz}$ et $g_b(2) = 2,36 \text{ MHz/torr}$.

[*] Nous pensons que ces fluctuations sont reliées au fait que l'intensité laser est faible et donc que la cavité se trouve près du seuil d'oscillation, dans un régime de fonctionnement quasi-linéaire. L'intensité doit être alors très sensible aux fluctuations de populations des niveaux $3s_2$ et $2p_1$, elles-mêmes reliées aux fluctuations de décharge du tube laser.

FIGURE B-19 : Résonance de saturation du niveau $2p_1$
 - (I) Observation directe. - (II) Courbe obtenue par
 différence entre l'intensité de la fluorescence à 5852 Å
 et l'intensité de la raie laser. On a reporté les points
 de la forme de Lorentz théorique de largeur $\Delta H = 6,40$ G
 (1% Ne - 99% He - $p = 2,2$ torrs - $i_c = 8$ mA - $i_\lambda = 0,76$)

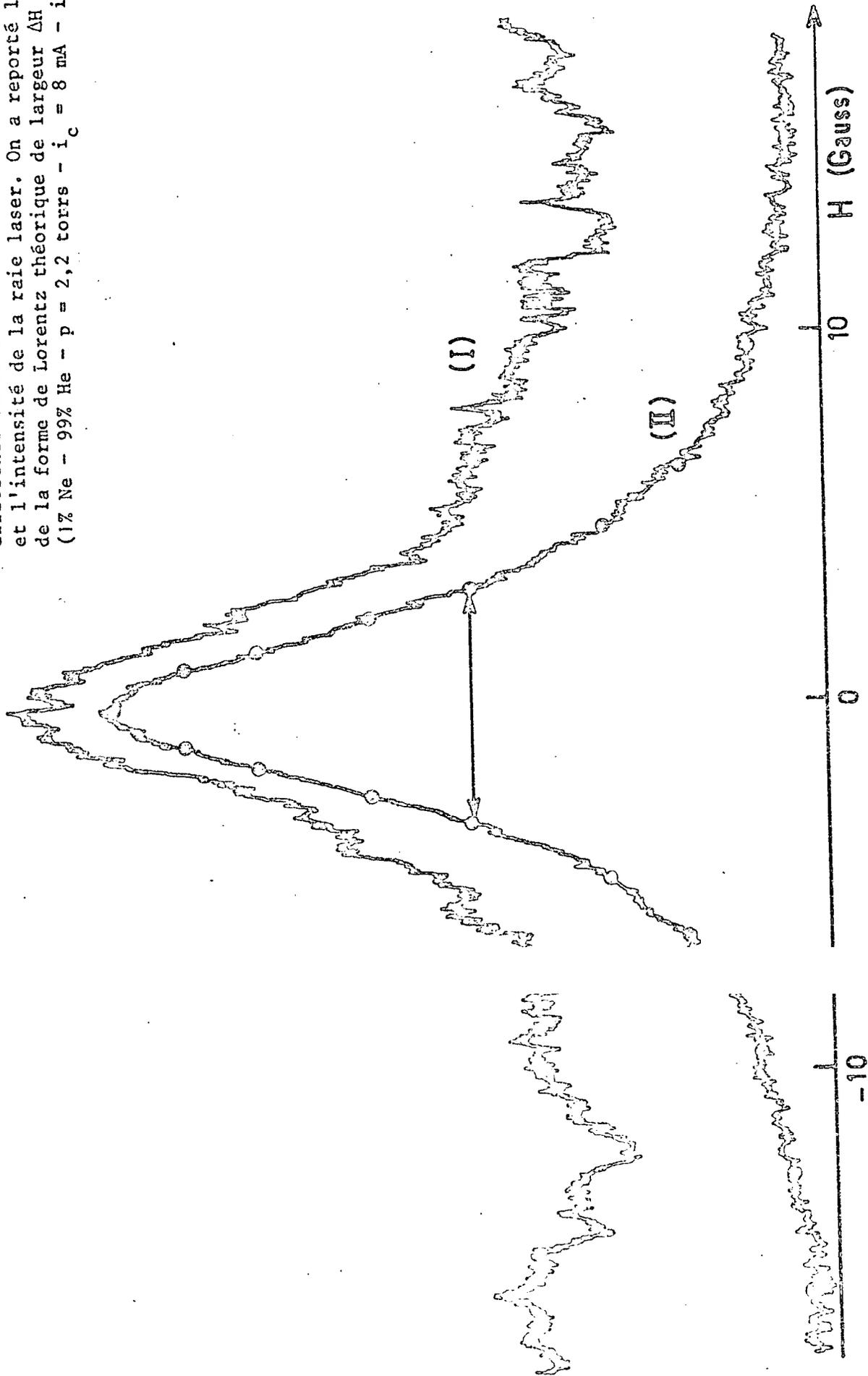
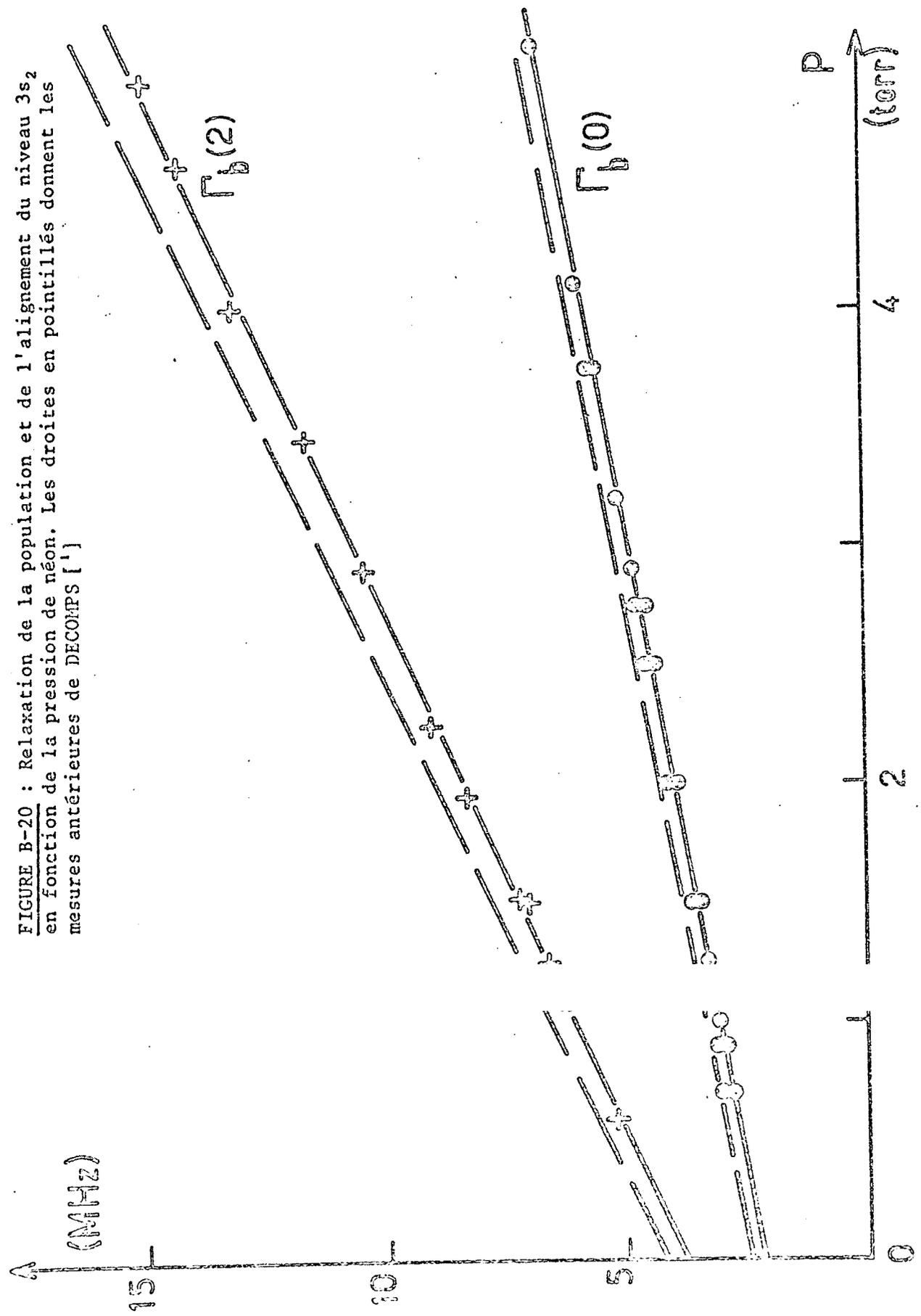


FIGURE B-20 : Relaxation de la population et de l'alignement du niveau $3s_2$ en fonction de la pression de néon. Les droites en pointillés donnent les mesures antérieures de DECOMPS [1]



On a déjà interprété le désaccord sur $\gamma_b(2)$. Le léger désaccord sur les pentes peut être dû à une différence entre les extrapolations à intensité de décharge nulle. Nous reviendrons plus loin là-dessus.

Nous nous sommes servis des mesures de $\frac{\Gamma(2)}{\Gamma(0)}$ effectuées par DECOMPS à partir du taux d'anisotropie, pour calculer $\Gamma_b(0)$ (remarquons que dans ce cas, il n'y a pas de problème d'extrapolation à intensité laser nulle, puisque le taux d'anisotropie est constant). On trouve

$$\begin{aligned} \gamma_b(0) &= 2,21 \pm 0,15 \text{ MHz} \\ g_b(0) &= 0,89 \pm 0,07 \text{ MHz/torr} \end{aligned} \quad (\text{B,45})$$

A cause de l'emprisonnement de la raie de résonance $\lambda = 600 \text{ \AA}$ ($3s_2 \rightarrow 1p_0$), les valeurs de $\gamma_b(2)$ et $\gamma_b(0)$ sont différentes. Bien entendu, le désaccord entre notre valeur de $\gamma_b(2)$ et celle de DECOMPS se répercute sur la valeur de $\gamma_b(0)$ (DECOMPS trouvait $\gamma_b(0) = 2,46 \text{ MHz}$), mais par contre le rapport de branchement de la raie de résonance, λ , qui est déduit de $\frac{\gamma_b(2)}{\gamma_b(0)}$ à partir de la formule (B,31), reste le même

$$\lambda = 0,705 \pm 0,016$$

On déduit alors pour la largeur naturelle du niveau $3s_2$, γ_b , la durée de vie, τ , la probabilité de transition de la raie de résonance, Γ , et le taux de relaxation de l'orientation lorsque la diffusion multiple est saturée ($\gamma_b(1) = \gamma_b - \frac{\Gamma}{2}$)

$$\begin{aligned} \gamma_b &= 7,50 \pm 0,44 \text{ MHz} \\ \tau &= 21,21 \pm 1,24 \text{ ns} \\ \Gamma &= 5,29 \pm 0,43 \text{ MHz} \\ \gamma_b(1) &= 4,86 \pm 0,23 \text{ MHz} \end{aligned} \quad (\text{B,46})$$

Le tableau suivant permet de comparer ces valeurs (exprimées en unités de 10^6 s^{-1}) avec les mesures antérieures

	$\gamma_b(0)$	$\gamma_b(1)$	$\gamma_b(2)$	γ_b	Γ	τ (ns)
KLOSE [¹²]	16,1±1,2			40,6±3,2	24,5 ± 2	24,6 ± 2
LAWRENCE et LISTZ [¹³]				43,3±2,8		23,1±1,5
DECOMPS [¹]	15,4±0,75	34 ± 1,8	26,5±0,6	52,5±2,3	37 ± 2,3	19,1 ± 1
DUMONT [¹⁰]		29,6±2,8				
Calcul théorique [⁶]				46,2	27,6	21,6
Présent travail	13,9±1	30,5±1,5	23,9±0,9	47,1±2,8	33,2±2,7	21,2±1,3

Nous remarquons d'abord que nos mesures conduisent à une valeur de $\gamma_b(1)$ qui est en très bon accord avec celle directement mesurée par DUMONT [10] à l'aide d'un laser de polarisation circulaire et d'une cellule à l'extérieur de la cavité. Notre valeur de la durée de vie, τ , est en meilleur accord avec les mesures antérieures de KLOSE [12] et de LAWRENCE et al [13] que celles de DECOMPS. Enfin, la largeur naturelle du niveau $3s_2$ que nous obtenons est très proche d'une détermination théorique utilisant la méthode du potentiel central paramétrique [6] mais il y a désaccord pour la probabilité de transition de la raie de résonance, Γ .

Les variations de $\Gamma(2)$ en fonction de la pression, pour différents mélanges d'hélium et de néon, sont reportées sur la figure B-21. La réabsorption de la raie de résonance $3s_2 \rightarrow 1p_0$ est toujours complète et la valeur extrapolée à pression nulle est toujours égale à 3,8 MHz, à la précision des mesures. Les pentes de l'élargissement par la pression sont :

20% Ne - 80% He $\rightarrow g_b(2) = 1,94 \pm 0,12$ MHz/torr	(B,47)
10% Ne - 90% He $\rightarrow g_b(2) = 1,90 \pm 0,08$ MHz/torr	

Les variations de $g_b(2)$ avec la composition du mélange He-Ne sont reportées sur la figure B-22. La valeur extrapolée pour l'hélium est

$$g_b(2) = 1,86 \pm 0,10 \text{ MHz/torr} \quad (B,48)$$

Toutes ces valeurs (B,47) et (B,48) sont nettement supérieures aux valeurs obtenues par DECOMPS, qui a trouvé 1,52 MHz/torr pour l'élargissement avec la pression d'hélium (cf. droite en pointillés sur la figure B-22). Ce désaccord reste assez mystérieux. Une interprétation possible pourrait venir des différences observées entre nos mesures de l'élargissement de l'effet Hanle avec l'intensité de la décharge et les siennes. On trouve que l'élargissement de l'effet Hanle est proportionnel à l'intensité de la décharge, i_c , et que la pente de cet élargissement, $\frac{d\Gamma_b(2)}{d i_c}$, est à peu près proportionnelle à la pression, p .

Si nous définissons le coefficient d'élargissement, $K(2)$, par

$$K(2) = \frac{1}{p} \cdot \frac{d\Gamma_b(2)}{d i_c} \quad (B,49)$$

les valeurs obtenues sont résumées dans le tableau suivant (en kHz/μA/torr) :

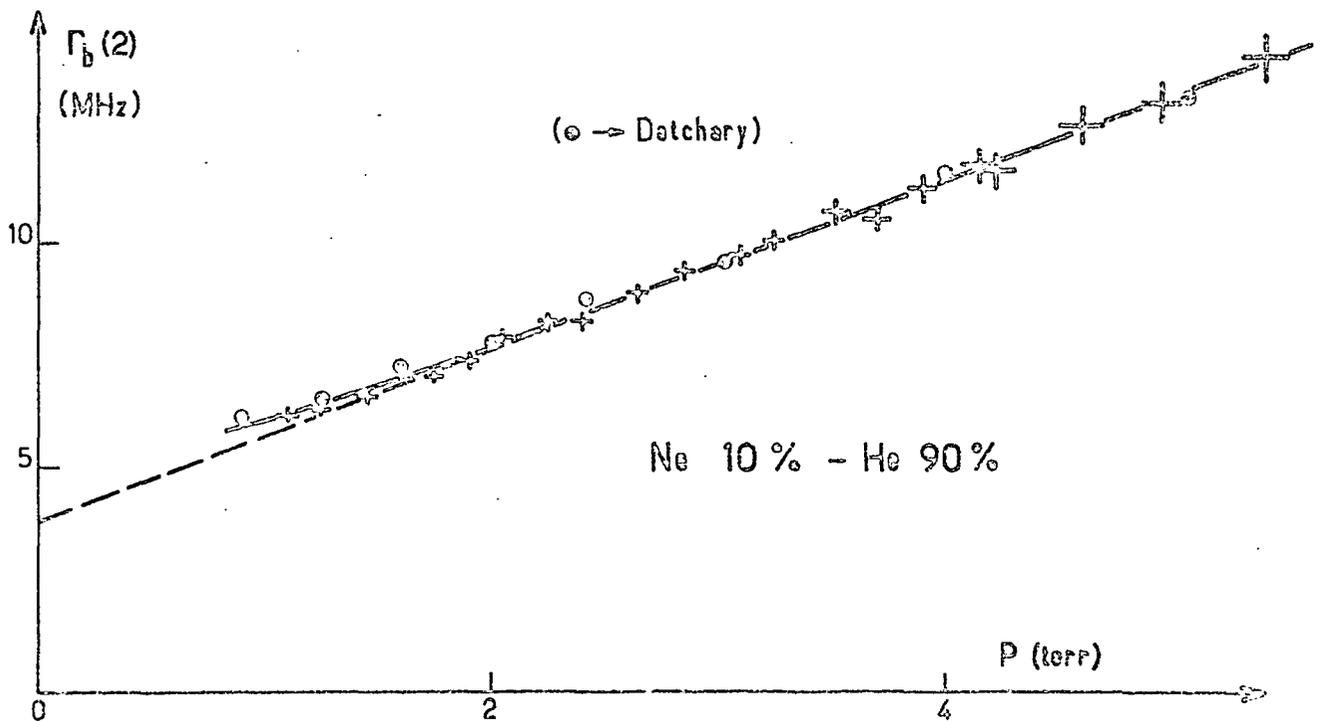
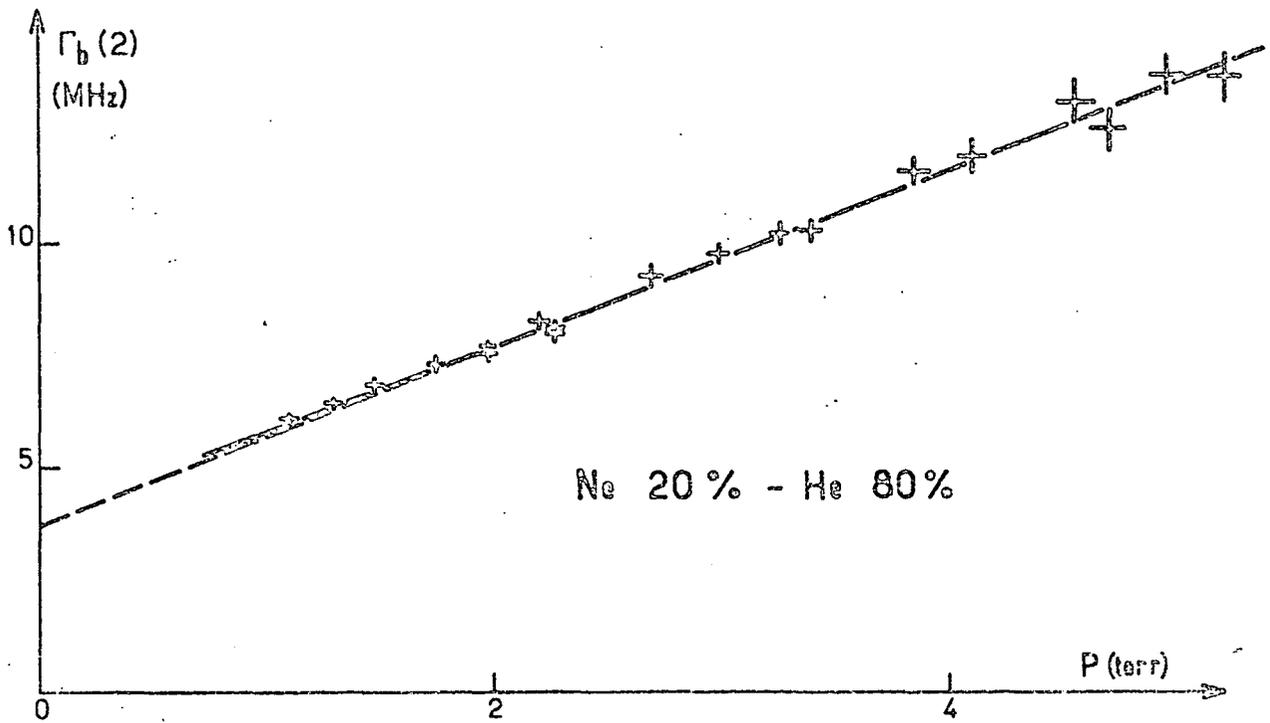


FIGURE B-21 : Taux de relaxation de l'alignement du niveau $3s_2$ pour divers mélanges d'hélium et de néon. Pour le mélange 10% Ne - 90% He, les points (⊙) proviennent de résultats expérimentaux obtenus à l'aide de la raie laser $\lambda \approx 6401 \text{ \AA}$ (cf. chapitre III et réf. [1^o])

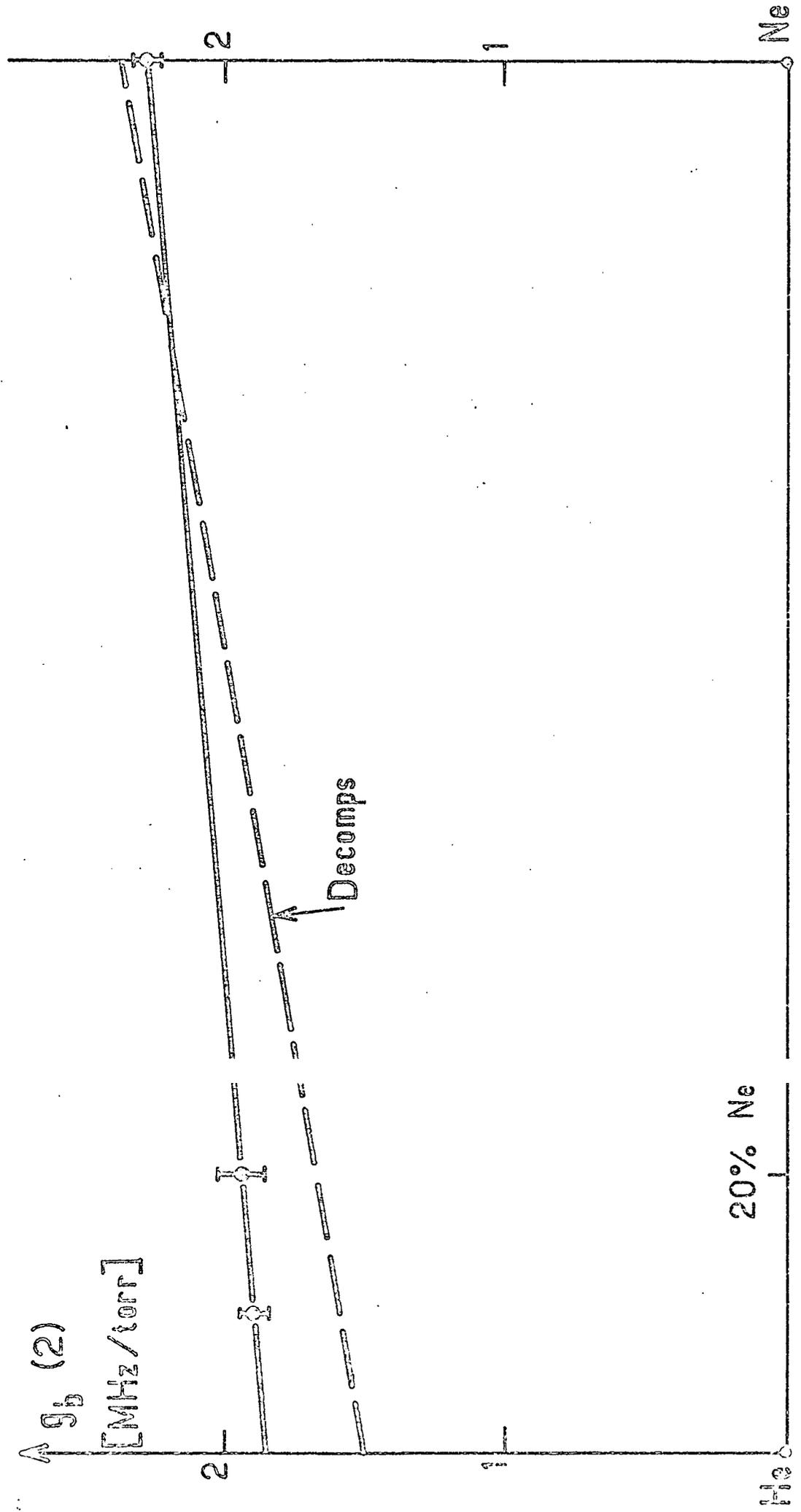


FIGURE B-22 : Elar ssement de $\Gamma_b (2)$ avec la pression en fonction de la concentration de néon

Concentration de néon	100%	20%	10%	1%
DECOMPS [1]	37 ± 6	44 ± 6	49 ± 9	61 ± 15
Présentes mesures	42 ± 9	37 ± 9	25 ± 9	23 ± 5

Il n'est pas étonnant que les valeurs trouvées soient différentes, car nous n'avons pas employé les mêmes cellules et les caractéristiques de la décharge électrique dépendent du type de cellule employé. Par contre, le fait que K(2) augmente avec la concentration d'hélium dans les mesures de DECOMPS, alors que c'est le contraire pour nos mesures, est beaucoup plus troublant et n'a pas reçu d'explication satisfaisante. Les mesures de DUMONT [10] sur l'élargissement de l'orientation donnent des mesures qualitativement semblables aux nôtres (l'élargissement est beaucoup plus fort dans le néon que dans les mélanges He-Ne).

Si on compare les mesures de DECOMPS et les nôtres, on constate une étroite corrélation entre les écarts observés sur la mesure de $g_b(2)$ et ceux observés sur la mesure de K(2) : la différence entre les deux séries de mesures augmente avec la concentration d'hélium et a un signe différent pour K(2) et $g_b(2)$. Il en résulte que pour $i_c \approx 12 \text{ mA}$ (*) l'élargissement de $\Gamma(2)$ avec la pression devient semblable pour les deux séries de mesure, comme le montre le tableau suivant qui donne $g_b(2) + 12 K(2)$ en MHz/torr

	100% Ne	20%	10%	1%
DECOMPS	2,80	2,22	2,19	2,25
Présentes mesures	2,77	2,38	2,20	2,14

Le désaccord entre les mesures d'élargissement par la pression serait alors dû à une différence entre les extrapolations des largeurs d'effet Hanle à intensité de décharge nulle.

(*) Il est intéressant de remarquer qu'en général cette valeur du courant de décharge donne le rapport signal sur bruit optimum.

II.2.c. Etude de l'emprisonnement de la raie de résonance $\lambda_0 = 600 \text{ \AA}$
($3s_2 \rightarrow 1p_0$)

Nous allons maintenant analyser les mesures effectuées dans des mélanges 1% Ne-99% He. Un premier résultat important est que, contrairement à ce qui se passait dans le néon pur ou dans les mélanges 10% Ne-90% He et 20% Ne-80% He, les largeurs de l'effet Hanle du niveau $3s_2$ et de la résonance de saturation du niveau $2p_1$ ne sont plus identiques. Comme le montre la figure B-23, l'élargissement par la décharge est identique pour l'effet Hanle et la résonance de saturation, mais la résonance de saturation est plus large que l'effet Hanle. Par ailleurs, la figure B-24 montre que les largeurs extrapolées à intensité de décharge nulle sont supérieures aux valeurs calculées en supposant que la diffusion multiple de la raie de résonance est saturée :

$$\Gamma_b^{as}(2) = 3,80 + 1,86 p \quad (B,50)$$

La réabsorption de la raie $\lambda_0 = 600 \text{ \AA}$ n'est donc plus totale.

Pour interpréter ces résultats, nous introduisons le coefficient moyen d'absorption du gaz atomique (OMONT [¹⁵]) :

$$\chi = \left(\frac{1}{2\pi} \right)^{3/2} \frac{3\Gamma \lambda_0^3}{4u} \cdot \frac{p(\text{Ne})}{kT} \quad (B,51)$$

où Γ est la probabilité de transition (éq. (B,46)) et λ_0 la longueur d'onde de la raie de résonance. u est la vitesse quadratique moyenne des atomes de néon :

$$u = \sqrt{\frac{RT}{2M}} \quad (B,51 \text{ bis})$$

Le libre parcours moyen d'un photon de résonance est alors :

$$l = \chi^{-1} \quad (B,52)$$

A la température ordinaire, on trouve que :

$$l \approx 0,05 / p (\text{Ne}) \quad (B,53)$$

où l est exprimé en mm et la pression de néon en torr. Il faut alors comparer l au diamètre de la cellule ($D_c = 3\text{mm}$) et au diamètre du faisceau laser ($D_L \approx 1$ à $1,5 \text{ mm}$). Trois cas sont possibles :

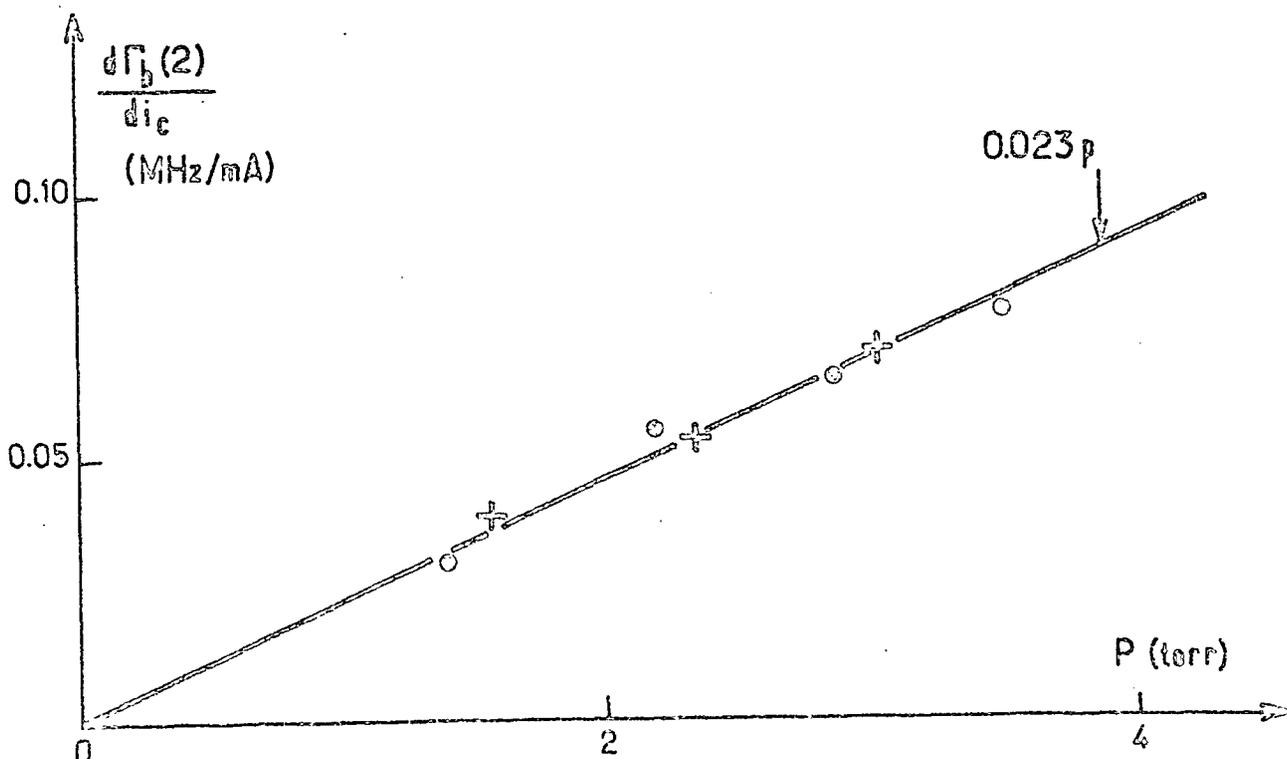
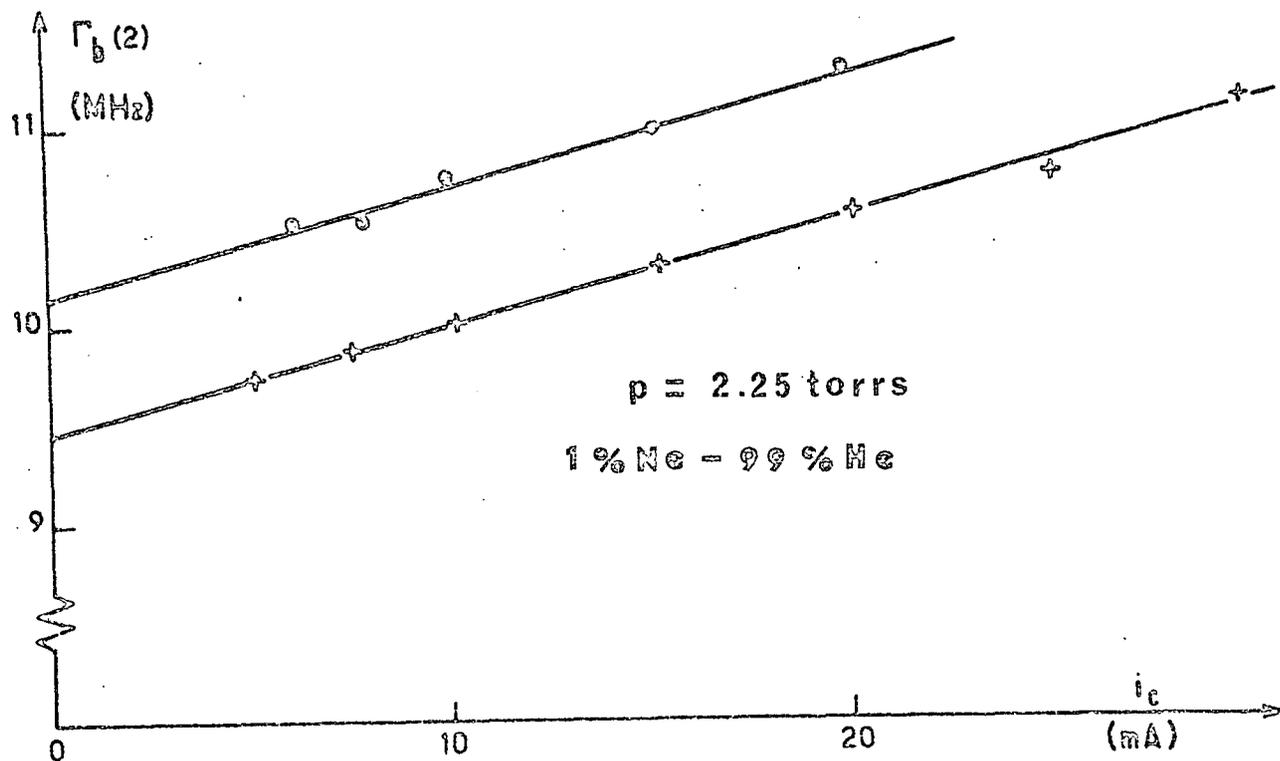


FIGURE B-23 : (HAUT) Elargissement de l'effet Hanle (+) et de la résonance de saturation (○) avec l'intensité de la décharge
 (BAS) Pente de l'élargissement en fonction de la pression (1% Ne-99% He)

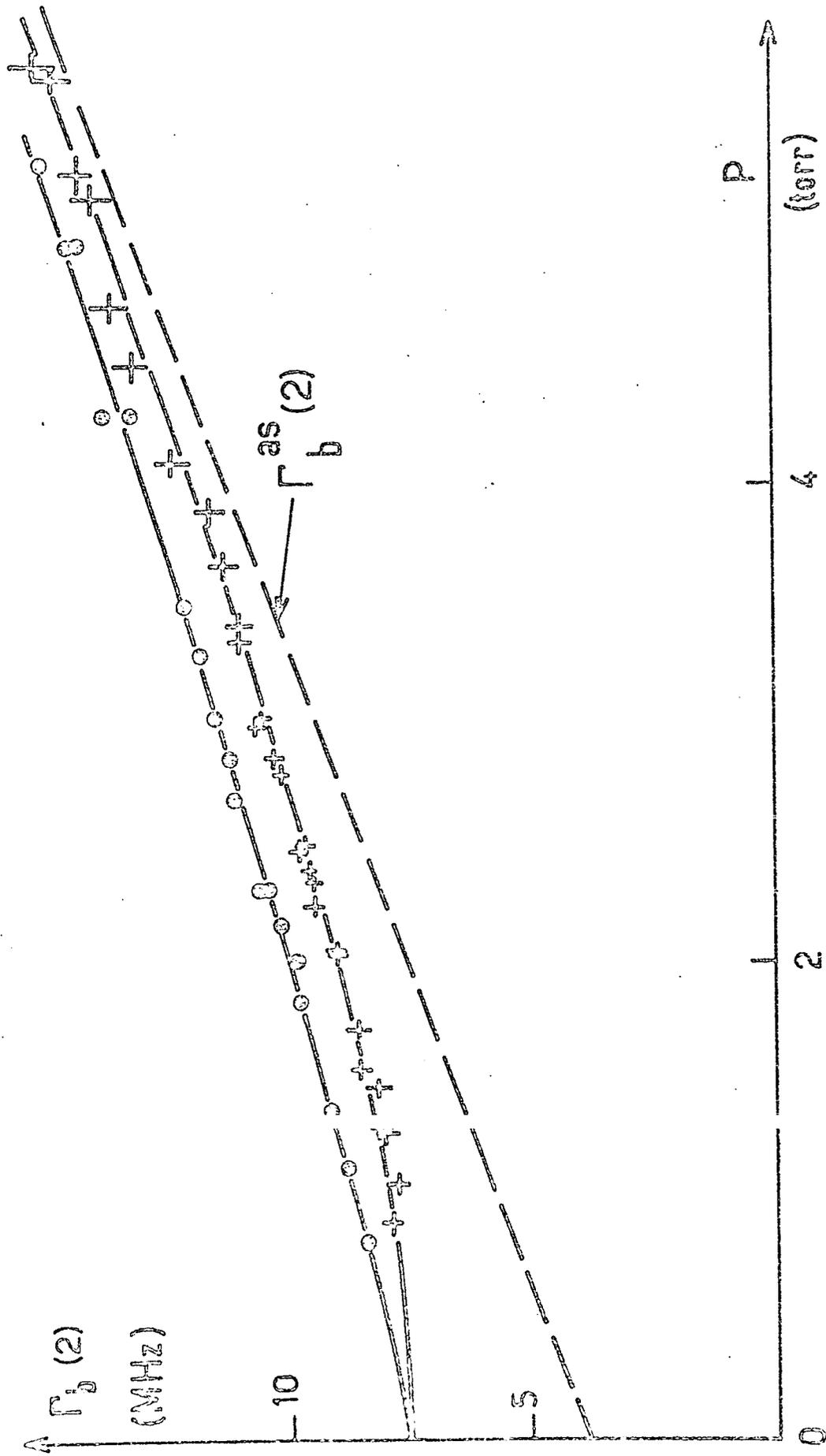


FIGURE B-24 : Largeurs de l'effet Hanle (+) et de la résonance de saturation (o) en fonction de la pression (1% Néon 99% He). La droite en pointillés donne le taux de relaxation de l'alignement lorsque la raie de résonance est complètement réabsorbée dans la cellule.

α) $\lambda \ll D_L$

Cela correspond approximativement à $p(\text{Ne}) > 0,1$ torr. Le libre parcours moyen des photons est beaucoup plus petit que le diamètre du faisceau : par suite, les atomes, qui sont réexcités dans le niveau $3s_2$ par réabsorption d'un photon de résonance, se trouvent toujours à l'intérieur du faisceau laser et interagissent avec lui. La réponse non-linéaire n'est pas perturbée par les processus de diffusion multiple : quand la diffusion multiple est saturée, la largeur de la résonance de saturation est identique à celle de l'effet Hanle (c'est le cas des expériences réalisées dans le néon pur avec les raies laser 7305 \AA et $1,52 \mu$).

β) $D_L \lesssim \lambda \lesssim D_c$

Contrairement au cas précédent, la longueur caractéristique de la diffusion multiple de la raie de résonance est de l'ordre de grandeur du diamètre du faisceau, et ce phénomène ne peut plus être considéré comme "local". En effet, certains photons de résonance ayant été émis par les atomes en interaction avec le laser peuvent être réabsorbés par des atomes ne se trouvant plus dans le faisceau. Puisque ces atomes n'interagissent pas avec le laser, ils n'apportent aucune contribution à la résonance de saturation, mais, par contre, ils contribueront toujours à l'effet Hanle : la durée de vie de la cohérence Zeeman du niveau $3s_2$, déduite de l'effet Hanle, est alors trouvée plus longue que celle déduite de la résonance de saturation. Ceci explique pourquoi la résonance de saturation est plus large que l'effet Hanle.

Par ailleurs, l'élargissement par la décharge reste le même pour les deux résonances (cf. figure B-23), car les collisions électroniques, qui sont responsables pour l'essentiel de cet élargissement, sont des phénomènes "locaux" : la distance moyenne parcourue par un atome durant une collision est très petite devant le diamètre du faisceau.

En éliminant l'effet des collisions électroniques (par extrapolation à intensité de décharge nulle) et l'effet des collisions atomiques (en retranchant $\Gamma_b^{\text{as}}(2)$, équation (B,50)), on peut isoler les variations de largeur liées seulement à la diffusion multiple des photons de résonance (figure B-25). On peut comparer ces variations avec les prédictions de la théorie de la diffusion multiple [¹⁵] :

$$\Gamma_b(2) - \Gamma_b^{\text{as}}(2) = 0,7 \cdot \Gamma [1 - x(\chi L)] \quad (\text{B,54})$$

où

$$x(\chi L) = 1 - \frac{1}{\sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} dy \exp \{ -y^2 - \chi L \sqrt{2} e^{-y^2} \} \quad (\text{B,55})$$

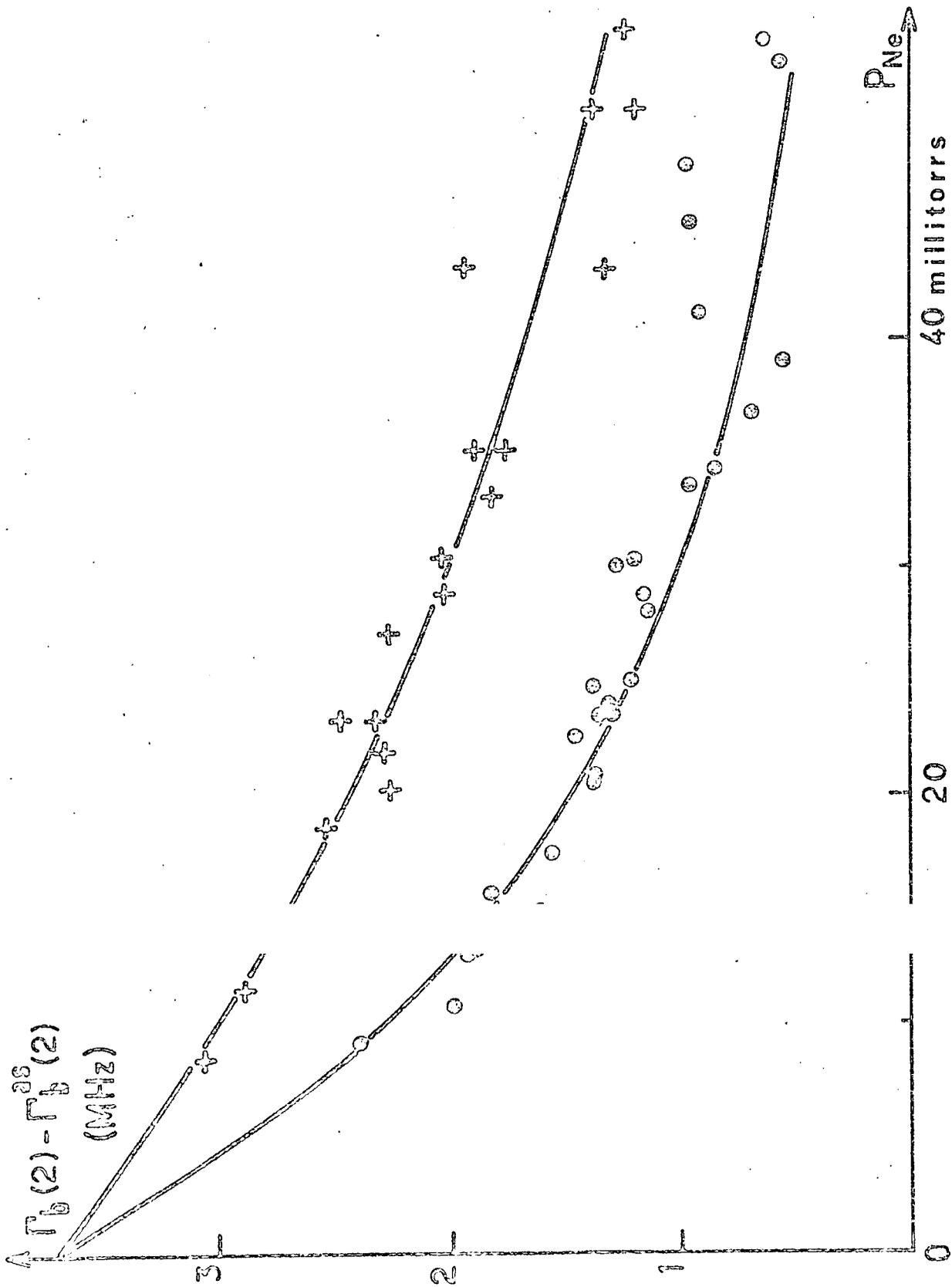


FIGURE B-25 : Effet de la fusion multiple seule sur l'effet Hanle (o) et sur la résonance de saturation (+)

α représente la probabilité moyenne pour un photon de résonance d'être réabsorbé avant de sortir de la cellule. L est une "dimension standard" de la cellule (L donne un ordre de grandeur de ses dimensions dans le cas d'une cellule qui n'est pas sphérique). En raison de ce que nous avons dit plus haut, la longueur L_H associée à l'effet Hanle doit être liée à la "dimension standard" de la cellule, alors que celle associée à la résonance de saturation, L_S , doit être liée à la "dimension standard" du faisceau laser, puisque la résonance de saturation n'est sensible qu'à la réabsorption des photons de résonance à l'intérieur du faisceau laser. Comme χ est proportionnel à $p(\text{Ne})$, nous avons cherché à déterminer $\chi L/p(\text{Ne})$. L'accord entre les résultats expérimentaux et les formules théoriques est réalisé pour :

$$\frac{\chi L_H}{p(\text{Ne})} = 50 \pm 5 \quad (\text{B},56)$$

et

$$\frac{\chi L_S}{p(\text{Ne})} = 21,5 \pm 2 \quad (\text{B},57)$$

où $p(\text{Ne})$ est exprimé en torrs. Les courbes des figures B-24 et B-25 sont les courbes théoriques tracées à partir de ces valeurs. Si on suppose que la température du gaz atomique est de 300°K, on trouve que $L_H = 2,3$ mm et $L_S = 1$ mm, valeurs tout à fait comparables aux dimensions de la cellule (diamètre 3 mm) et du faisceau laser. Cependant, on n'obtient de cette façon que des valeurs indicatives d'une part parce que la température de la décharge ne peut pas être connue avec précision, d'autre part parce que la théorie de la diffusion multiple suppose une cellule sphérique alors que notre cellule est cylindrique.

Par contre, le rapport L_H / L_S doit être plus significatif, car la longueur L_H est reliée au diamètre de la cellule, D_C , de la même façon que L_S est reliée au diamètre du faisceau, D_L . On obtient alors

$$\frac{D_L}{D_C} = \frac{L_S}{L_H} = 0,43 \pm 0,08 \quad (\text{B},58)$$

Puisque $D_C = 3$ mm, on obtient de cette façon $D_L = 1,30 \pm 0,25$ mm. Cette valeur est en bon accord avec une mesure directe du diamètre du faisceau qui donne une valeur de l'ordre de 1,4 mm, lorsque le laser oscille en mode TEM_{00} ($i_\lambda < 0,3$ mW).

$\gamma) \ell \gg D_C$

Les photons de résonance sortent de la cellule sans être réabsorbés et les processus de diffusion sont négligeables. Dans ce cas, l'effet Hanle et la résonance de saturation sont de nouveau identiques, leur largeur étant donnée par la largeur naturelle du niveau $3s_2$.

II.2.d. Comparaison avec les mesures de DUMONT sur l'orientation du niveau $3s_2$

M. DUMONT [¹⁰] a étudié la relaxation de l'orientation du niveau $3s_2$ à l'aide d'une irradiation laser de polarisation circulaire, résonnante pour la transition $3s_2 - 2p_4$. Pour la relaxation de l'orientation, à pression nulle et diffusion multiple saturée de la raie de résonance, il a trouvé, en gauss (1 G = 1,812 MHz) :

$$\gamma_b(1) = 2,60 \pm 0,25 \text{ Gauss} \quad (\text{B},59)$$

Nous avons déjà vu que cette valeur est en très bon accord avec celle que nous calculons à partir de nos mesures : $2,68 \pm 0,13 \text{ G}$ (éq. (B,46)). Nous allons maintenant voir si notre étude de la diffusion multiple de la raie de résonance nous permet d'interpréter les résultats que DUMONT a obtenus dans un mélange 1% Ne-99% He. DUMONT a trouvé que l'élargissement avec la pression d'hélium était égal à 1,32 G/tor. Si la diffusion multiple était saturée, la relaxation de l'orientation serait donc donnée par :

$$\Gamma_b^{es}(1) = 2,60 + 1,32 p \quad (\text{B},60)$$

Mais il faut ajouter la contribution de la diffusion multiple qui est :

$$\frac{\Gamma}{2} (1 - \alpha(\chi L)) \quad (\text{B},61)$$

Utilisant la valeur précédemment mesurée de Γ (2,92 Gauss, éq. (B,46)), on obtient finalement :

$$\Gamma_b(1) = 4,06 + 1,32 p - 1,46 \alpha(\chi L) \quad (\text{B},62)$$

La dernière grandeur à déterminer est χL . DUMONT ayant utilisé une cellule de 3 mm de diamètre, nous retiendrons la valeur $\chi L = 50 p(\text{Ne})$ (éq. (B,56)). La figure B-26 montre les variations déduites de la relation (B,62) et les trois valeurs mesurées par DUMONT. On voit que l'accord est excellent. Il y a donc une très bonne concordance entre nos mesures faites sur la population et l'alignement du niveau $3s_2$ (cellule à l'intérieur de la cavité-polarisation linéaire) et les mesures de DUMONT sur l'orientation du niveau $3s_2$ (cellule à l'extérieur-polarisation circulaire).

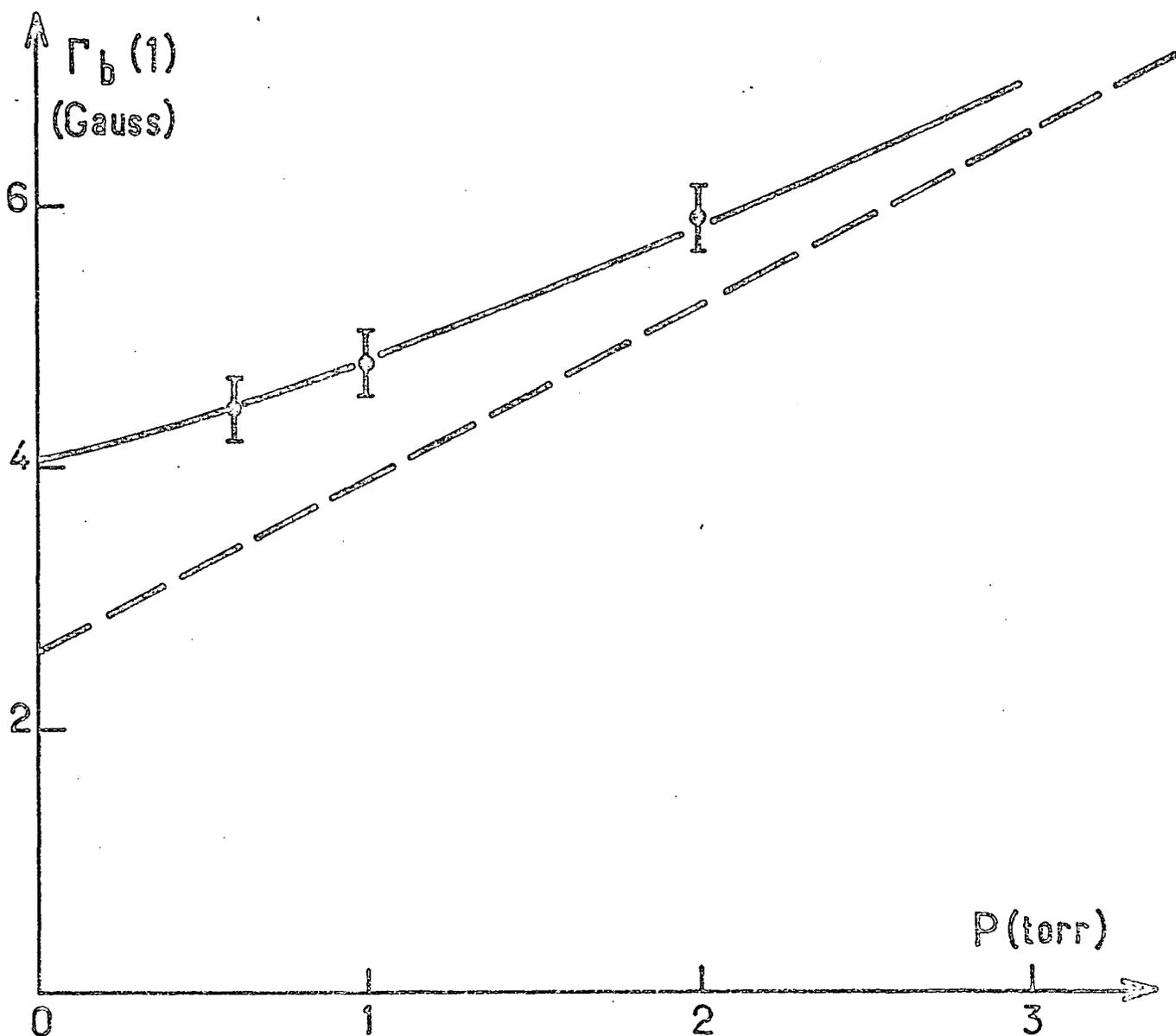


FIGURE B-26 : Relaxation de l'orientation du niveau $3s_2$ dans un mélange 1% Ne - 99% He. La courbe est théorique (cf. texte éq. (B,62)) et les points proviennent des résultats expérimentaux de DUMONT [¹⁰]

II.3 - Conclusion

Cette étude des transitions $J = 1 - J = 0$ nous a permis de mettre en évidence les points suivants :

II.3.a. L'approximation "Broad Line" se trouve bien vérifiée pour les expériences réalisées dans le néon. Ceci est en particulier bien montré par l'analyse de l'effet de la réabsorption des raies de résonance sur la réponse non-linéaire des atomes (égalité des largeurs de l'effet Hanle et de la résonance de saturation, quand la diffusion multiple est saturée). La réponse atomique est donc indépendante de la vitesse.

II.3.b. Les expériences sont interprétables à l'aide d'un seul paramètre γ qui peut varier dans des intervalles très différents (1 - 4 MHz pour $\lambda = 7305 \text{ \AA}$ et 6 - 90 MHz pour $\lambda = 1,52 \mu$). Ceci montre non seulement la validité de l'approximation "Broad Line", mais que de plus l'irradiation laser est spatialement homogène à la précision de nos mesures. Par ailleurs, γ varie linéairement avec l'intensité laser, quand le laser fonctionne en mode TEM_{00} , mais cette proportionnalité disparaît avec l'apparition de modes transverses.

II.3.c. L'étude expérimentale a montré les limites d'une théorie fondée sur un développement de perturbations en fonction du champ électrique de l'onde laser. Le rayon de convergence de la série de perturbations est au maximum égal à γ_0 (B,28). Pour la raie $\lambda = 7305 \text{ \AA}$, dans les conditions expérimentales habituelles, $\gamma_0 \approx 4,8 \text{ MHz}$ et $\gamma < 4 \text{ MHz}$: le développement de perturbations est toujours convergent. Par contre, pour la raie $\lambda = 1,52 \mu$, γ est pratiquement toujours supérieur à $\gamma_0 \approx 5,8 \text{ MHz}$ et la série de perturbations est donc divergente. Il est alors nécessaire d'interpréter les résultats expérimentaux à l'aide d'une théorie non-perturbative.

II.3.d. Toute mesure nécessitant une extrapolation des résultats à intensité laser nulle doit être réalisée avec beaucoup de précautions.

C'est en particulier le cas pour l'étude de la relaxation de l'alignement à partir de la largeur de l'effet Hanle. En effet, non seulement l'élargissement radiatif de l'effet Hanle n'est pas proportionnel à γ , mais de plus γ ne varie pas toujours linéairement avec l'intensité laser. Seule une extrapolation réalisée soigneusement permet d'obtenir des mesures significatives et comparables à des résultats obtenus par d'autres méthodes. Remarquons cependant que le problème de l'extrapolation ne se pose pas pour certaines mesures, comme celle du taux d'anisotropie de la fluorescence qui permet d'étudier la relaxation de la population.

II.3.e. L'analyse de la réponse non-linéaire permet de mesurer la largeur naturelle de niveaux de moment cinétique nul et la probabilité d'émission spontanée sur la transition laser.

II.3.f. Enfin, cette étude a montré l'importance de la réabsorption de la raie de résonance sur les non-linéarités d'un laser à gaz et sur son fonctionnement, en général.

Lorsque le libre parcours moyen d'un photon est compris entre le diamètre du faisceau laser et le diamètre de la cellule, la réabsorption de la raie de résonance entraîne une diffusion spatiale de l'excitation laser et couple les atomes se trouvant à l'intérieur et à l'extérieur du faisceau laser. Cette sorte d'"homogénéisation spatiale" de la réponse atomique a été aussi observée par P.W. SMITH [¹⁶] sur la raie $\lambda = 6328 \text{ \AA}$.

Par ailleurs, il faut remarquer que la diffusion multiple des photons de résonance couple des atomes de vitesse différente et diffuse l'excitation atomique par la raie laser sur toute la distribution des vitesses atomiques. La diffusion multiple a donc tendance à rendre homogène la réponse atomique, linéaire et non-linéaire. Cet effet, qui a peu d'importance dans un laser multimode où la réponse est déjà quasiment homogène (dans le cadre de l'approximation "Broad Line"), en a évidemment beaucoup plus pour les lasers monomodes, comme l'ont montré différents auteurs [¹⁶][¹⁷].

III - TRANSITION $J_b = 1 - J_a = 1 : 3s_2 - 2p_2$ ($\lambda = 6401 \text{ \AA}$)

Après ces vérifications détaillées de la théorie sur les transitions les plus simples ($J = 1 - J = 0$), nous avons envisagé l'étude des transitions $J = 1 - J = 1$. L'intérêt de ces transitions réside dans le fait que l'étude de la réponse linéaire des atomes permet d'obtenir toutes les constantes de relaxation des niveaux de la transition. En effet, dans une transition $J = 1 - J = 0$, la réponse linéaire ne permet pas d'obtenir le temps de relaxation du niveau $J = 0$. Par contre, pour une transition $J = 1 - J = 1$, on sait que, d'une part le temps de relaxation de l'alignement de chaque niveau est obtenu par extrapolation à intensité laser nulle de la largeur de l'effet Hanle correspondant et que, d'autre part le temps de relaxation de la population et la probabilité d'émission spontanée sur la transition laser sont obtenus à partir du taux d'anisotropie de la fluorescence des deux niveaux, cette dernière mesure ne nécessitant aucune extrapolation puisque le taux d'anisotropie ne dépend pas de l'intensité du laser. Il ne reste alors que le paramètre γ à déterminer pour obtenir, à partir de la théorie, toutes les caractéristiques de la réponse non-linéaire : élargissement radiatif des deux effets Hanle, résonances de saturation sur les populations des différents sous-niveaux Zeeman, etc... L'utilisation d'un seul paramètre pour interpréter tous les effets non-linéaires représentera par suite un test très important de la validité de l'étude théorique.

L'étude expérimentale a été réalisée, sur la transition $3s_2 - 2p_2$ du néon ($\lambda = 6401 \text{ \AA}$) [14]. Un des intérêts de cette transition est que, le niveau $3s_2$ ayant déjà été étudié à l'aide de la raie $\lambda = 7305 \text{ \AA}$, nous pourrions confronter les résultats obtenus par les deux méthodes. L'oscillation de la cavité laser sur la raie $\lambda = 6401 \text{ \AA}$ est obtenue à l'aide de la configuration suivante [1] :

$$R_1 = 1,5 \text{ m} \left(\begin{array}{c} \xrightarrow{\quad L \quad} \\ \xleftarrow{\quad 1,8 \text{ m} \quad} \\ \xrightarrow{\quad C \quad} \end{array} \right) R_2 = 2 \text{ m}$$

Habituellement, cette configuration est trop convergente pour permettre l'oscillation de la cavité. On trouve en effet que cette configuration est très défavorable pour l'oscillation à 6328 \AA ($3s_2 - 2p_4$), alors que cette raie présente un gain très fort dans les décharges d'hélium-néon : la cavité oscille alors sur la raie $\lambda = 6401 \text{ \AA}$. Ce comportement est justifié par le rôle de lentille divergente joué par le milieu atomique pour la raie $\lambda = 6401 \text{ \AA}$, comme l'ont montré divers auteurs [19] [20]. Cette longueur d'onde est en effet proche de celle de la raie $\lambda = 6402 \text{ \AA}$

($2p_9 - 1s_5$) qui tombe sur un niveau métastable très peuplé et donc capable d'induire de la dispersion anormale. Comme les métastables sont détruits sur les parois, il existe un gradient de densité perpendiculairement à l'axe du tube. Ce gradient entraîne une variation radiale de l'indice de réfraction du milieu atomique qui est responsable de l'effet de lentille du tube amplificateur. Remarquons enfin que la configuration de la cavité facilite l'étude des effets non-linéaires. En effet, le faisceau laser se resserre près du miroir de plus grand rayon de courbure, c'est-à-dire ici au niveau de la cellule : la densité d'énergie lumineuse sera donc plus grande dans la cellule.

Les vérifications expérimentales, que nous exposons dans la suite, ont toutes été effectuées dans un mélange 10% Ne - 90% He, car ce mélange a l'intérêt de présenter un bon rapport signal sur bruit à la fois sur la fluorescence du niveau $3s_2$ et sur celle du niveau $2p_2$. On a vu au paragraphe II-2-c de la partie expérimentale que tant que $p(\text{Ne})$ est supérieur à 0,1 torr, la diffusion multiple de la raie de résonance $\lambda = 600 \text{ \AA}$ ($3s_2 \rightarrow 1p_0$) est saturée et que le libre parcours moyen d'un photon est petit devant les dimensions du faisceau. Donc, aussi longtemps que la pression du mélange est supérieure à 1 torr, il n'y a pas de diffusion spatiale de l'excitation laser et on n'a pas à prendre en considération les atomes se trouvant en dehors du faisceau laser : les résultats expérimentaux sont donc directement interprétables à l'aide de l'étude théorique du paragraphe IV de l'article II, où l'on suppose que tous les atomes sont en interaction avec le laser.

III.1 - Effets Hanle des niveaux $3s_2$ et $2p_2$

III.1.a. Formes de raie [26]

La figure B-27 montre les effets Hanle des niveaux $3s_2$ et $2p_2$ observés simultanément sur les raies de fluorescence $\lambda = 6163 \text{ \AA}$ ($2p_2 \rightarrow 1s_3$) et $\lambda = 7305 \text{ \AA}$ ($3s_2 \rightarrow 2p_1$). A la précision des mesures, ces effets Hanle ont la forme d'une courbe d'absorption de Lorentz, quelle que soit l'intensité du laser. Rappelons que la théorie prédit cette forme de Lorentz, lorsqu'on suppose qu'il n'existe qu'un temps de relaxation par niveau. En effet, dans ce cas, les alignements transversaux des deux niveaux ne sont pas couplés.

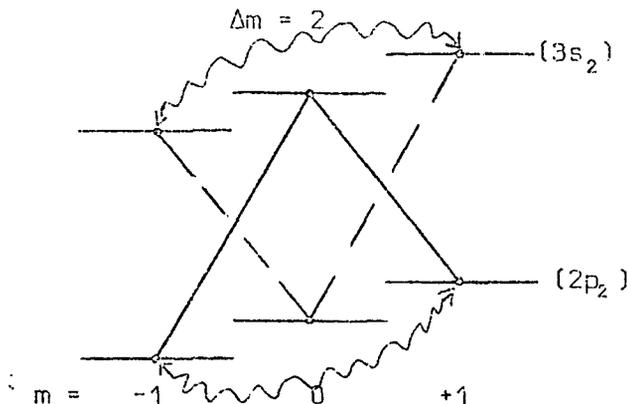
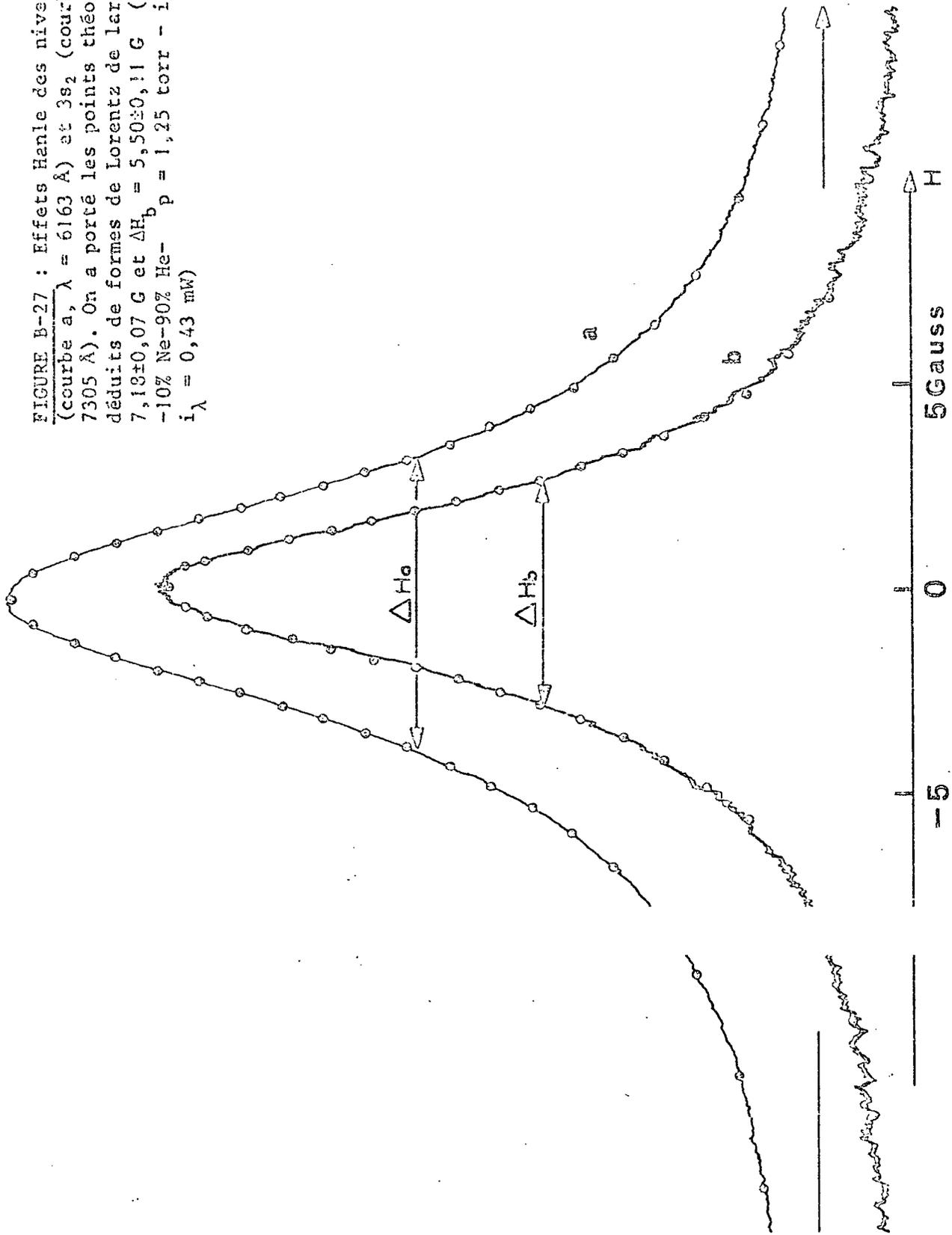


FIGURE B-27 : Effets Hanle des niveaux $2p_2$
 (courbe a, $\lambda = 6163 \text{ \AA}$) et $3s_2$ (courbe b, $\lambda =$
 7305 \AA). On a porté les points théoriques
 déduits de formes de Lorentz de largeurs $\Delta H =$
 $7,18 \pm 0,07 \text{ G}$ et $\Delta H_b = 5,50 \pm 0,11 \text{ G}$ (Laser 6401 \AA
 $-10\% \text{ Ne-90\% He-} p = 1,25 \text{ torr} - i_c = 12 \text{ mA}$
 $i_\lambda = 0,43 \text{ mA}$)



L'alignement transversal du niveau $3s_2$, qui correspond à la cohérence Zeeman $\Delta m = 2$, est créé à partir des transitions représentées en pointillés sur le diagramme ci-dessus, et n'est donc couplé qu'à la population du sous-niveau $m = 0$ du niveau $2p_2$. De même, l'alignement transversal du niveau $2p_2$ n'est couplé qu'à la population du sous-niveau $m = 0$ du niveau $3s_2$ (transitions représentées par des traits pleins). Pour chacun des deux ensembles de transitions considérés, le schéma des couplages est identique à celui d'une transition $J = 1 - J = 0$ et, comme dans ce cas, les effets Hanle ont une forme de Lorentz.

Par contre, si des processus de relaxation dépolarisants (collisions atomiques ou diffusion multiple) induisent des transitions entre sous-niveaux Zeeman d'un même niveau, leur effet conjugué avec celui du laser couple les deux alignements transversaux. En particulier, la diffusion multiple de la raie de résonance $3s_2 - 1p_0$, qui est saturée dans nos conditions expérimentales, est capable d'induire ce couplage. En pratique, l'application numérique montre que ce couplage reste toujours très faible : dans les conditions expérimentales de la figure B-27, la contribution, ϵ_{ba} (équ. II-57), de l'effet Hanle du niveau $3s_2$ dans l'effet Hanle du niveau $2p_2$ reste inférieure à 2,5%. De plus, comme les largeurs des deux effets Hanle sont du même ordre de grandeur, le couplage n'est pas capable d'induire de déformation par rapport à une forme de Lorentz (pour une étude détaillée de ce couplage, voir le paragraphe IV-B et la figure 3 de l'article II).

Il existe aussi un couplage induit par l'émission spontanée sur la transition laser [3]. Il est cependant lui aussi très faible. Dans les conditions expérimentales de la figure B-27 ($\gamma_{ba} \approx 0,18$ MHz et $\Gamma_b(2) \approx 7$ MHz), il est de l'ordre de $\gamma_{ba} / 2\Gamma_b(2) \approx 1,3\%$ et ne déforme pas significativement l'effet Hanle du niveau $2p_2$ (*).

En conclusion, la faiblesse de ces divers couplages justifie la forme Lorentzienne des effets Hanle, qui a été observée expérimentalement pour des pressions comprises entre 1 et 8 torrs d'un mélange 10% Ne- 90% He, quelle que soit l'intensité du laser.

(*) Le couplage par émission spontanée n'est pas assez important pour déformer sensiblement la forme de Lorentz de l'effet Hanle, mais il faudrait en tenir compte pour des mesures précises de $\Gamma_{2p_2}(2)$ à partir de la largeur de l'effet Hanle [3]

III.1.b. Elargissement radiatif des effets Hanle

Les effets Hanle s'élargissent lorsque l'intensité d'irradiation augmente. La figure B-28 montre les variations de largeur exprimées en MHz ($\Gamma_{\beta}^{i\lambda}(2) = \Delta H_{\beta} / g_{\beta} \mu_B$). Il faut alors comparer cet élargissement avec l'élargissement théorique donné par la formule II-61 :

$$\Gamma_{\beta}^I(2) = \gamma_{\beta}^I(2) \left\{ 1 - \epsilon_{\alpha\beta} \frac{[g_{\alpha} \gamma_{\beta}^I(2)]^2}{[g_{\alpha} \gamma_{\beta}^I(2)]^2 + [g_{\beta} \gamma_{\alpha}^I(2)]^2} \right\} \quad (B.63)$$

$\gamma_{\beta}^I(2)$ (équ. II-55) donne la largeur de l'effet Hanle du niveau β s'il n'y avait pas de couplage entre les alignements transversaux de a et b. $\epsilon_{\alpha\beta}$ donne l'importance du couplage entre les alignements transversaux (équ. II-57).

Pour comparer (B.63) avec les résultats expérimentaux, il faut connaître les différents $\Gamma(k)$. Les largeurs de l'effet Hanle extrapolées à intensité de laser nulle donnent $\Gamma_a(2)$ et $\Gamma_b(2)$. Cependant du fait des difficultés expérimentales déjà signalées pour les transitions $J = 1 - J = 0$ (courbure de l'élargissement près de l'origine), ces déterminations sont peu précises. Ces valeurs, ainsi que celles de $\Gamma(0)$ et γ_{ba}^{β} obtenues à partir du taux d'anisotropie de la fluorescence, servent de première approximation pour une méthode d'itération permettant d'ajuster les courbes théoriques aux points expérimentaux. Cette méthode, décrite en détail dans la réf. [14], permet de déterminer simultanément $\Gamma_{\alpha}(2)$ et γ/i_{λ} pour chacun des niveaux. Par exemple, dans le cas de la figure B-28, on trouve que le meilleur accord est obtenu avec $\Gamma_a(2) = 10,44$ MHz et $\gamma/i_{\lambda} = 71$ MHz/mW pour le niveau $2p_2$ et $\Gamma_b(2) = 6,92$ MHz et $\gamma/i_{\lambda} = 66$ MHz/mW pour le niveau $3s_2$.

Un point important est que les mesures de $\Gamma_b(2)$ sont en bon accord avec les mesures de relaxation de l'alignement du niveau $3s_2$ déduites de l'irradiation laser à 7305 \AA (§ II-2-b). Les valeurs de $\Gamma_b(2)$ obtenues après élimination de l'effet des collisions électroniques (25 kHz/mA/torr) ont été reportées sur la figure B-21 (points sur la courbe du bas) : il y a concordance entre les deux séries de mesure.

III.2 - Taux de pompage de la raie $\lambda = 6401 \text{ \AA}$

Tant que i_{λ} n'est pas supérieur à 0,4 mW, l'élargissement radiatif des effets Hanle peut s'interpréter en supposant γ proportionnel à i_{λ} . Comme le montre la figure B-29, les valeurs de $\omega = \gamma/i_{\lambda}$ obtenues à partir de l'élargissement radiatif du niveau $2p_2$ et du niveau $3s_2$ sont identiques et ne dépendent pas de la pression du mélange He-Ne :

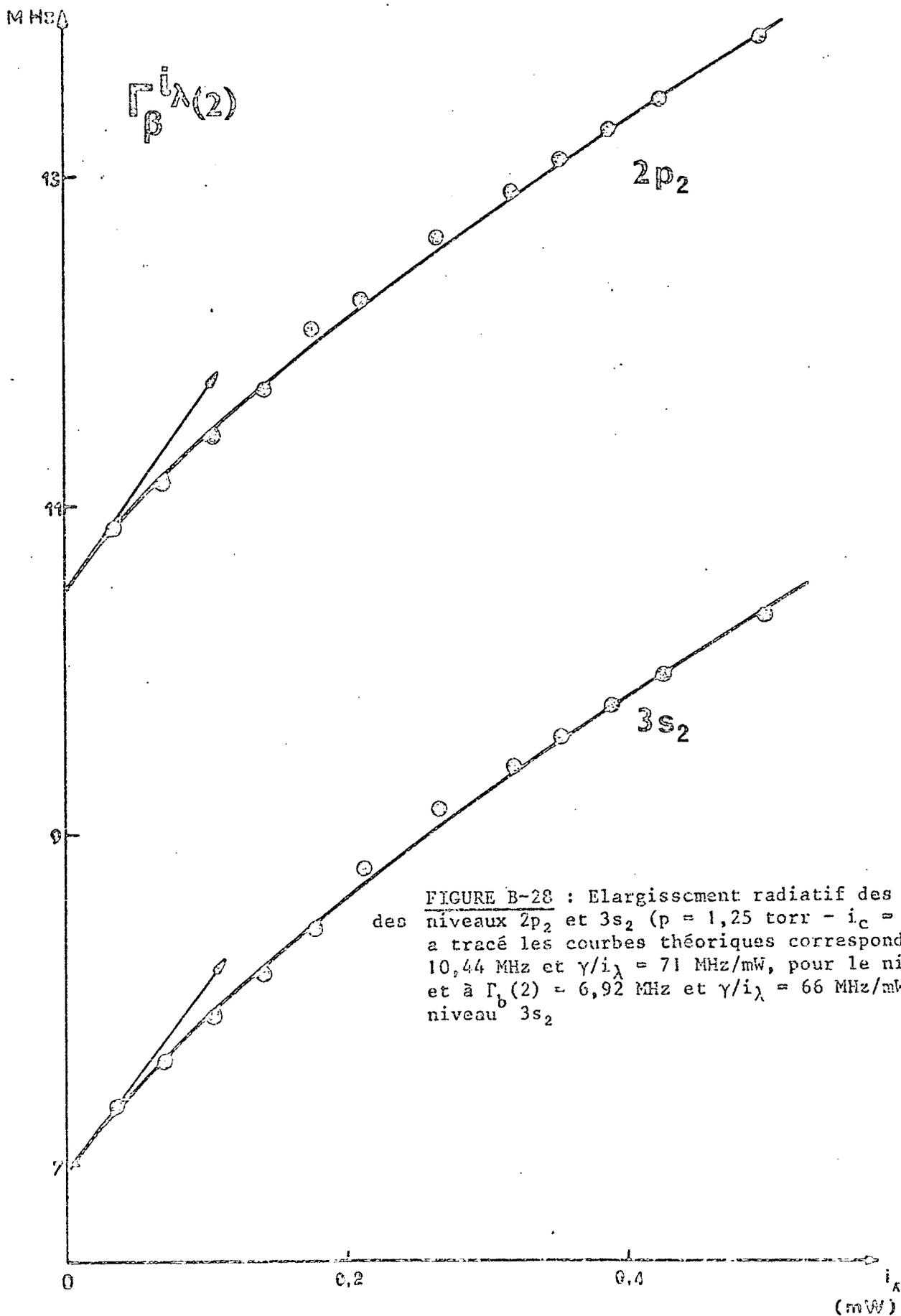


FIGURE B-28 : Elargissement radiatif des effets Hanle des niveaux $2p_2$ et $3s_2$ ($p = 1,25$ torr - $i_c = 12$ mA). On a tracé les courbes théoriques correspondant à $\Gamma_{\beta}^{i_{\lambda}(2)} = 10,44$ MHz et $\gamma/i_{\lambda} = 71$ MHz/mW, pour le niveau $2p_2$ et à $\Gamma_{\beta}^{i_{\lambda}(2)} = 6,92$ MHz et $\gamma/i_{\lambda} = 66$ MHz/mW pour le niveau $3s_2$.

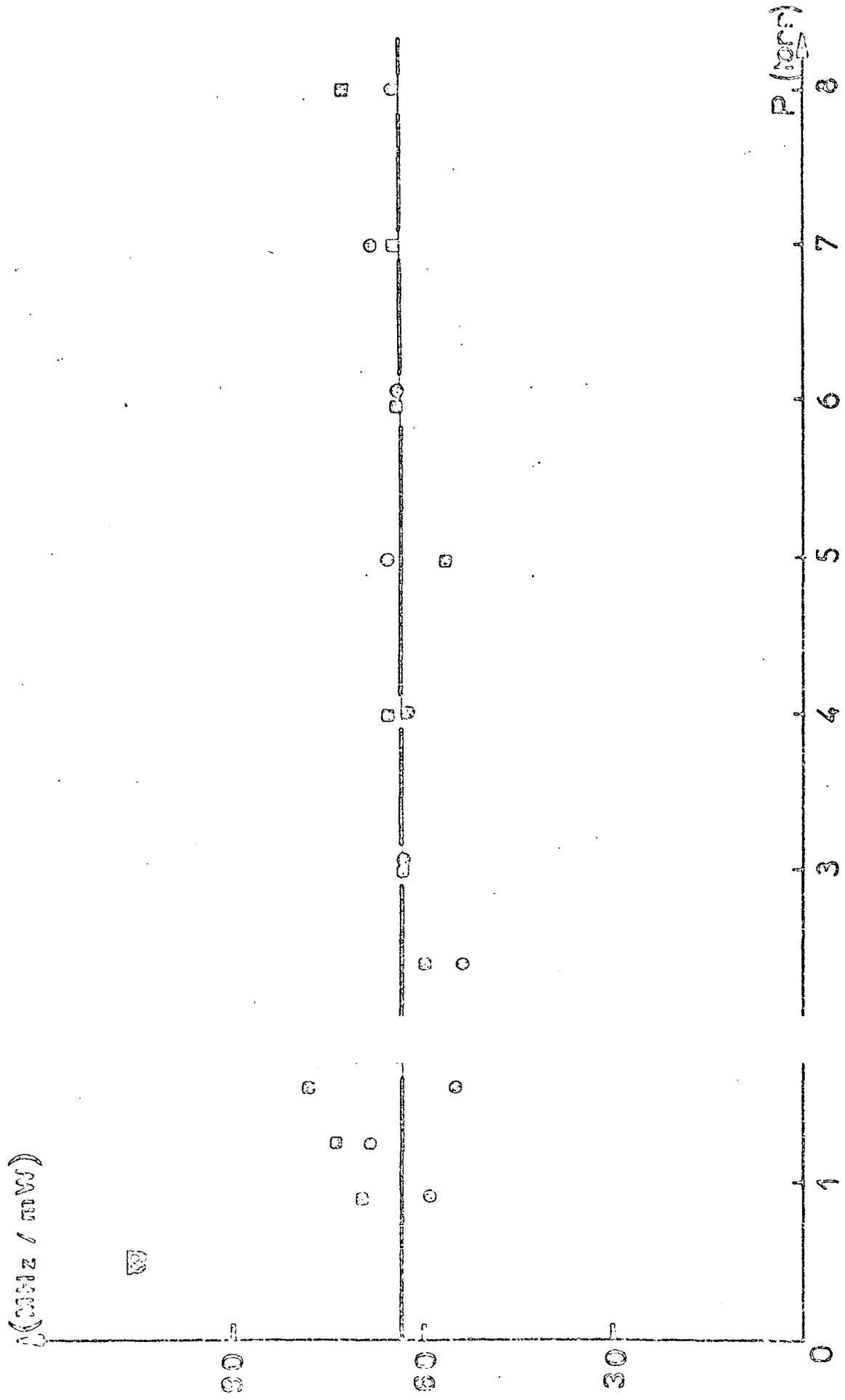


FIGURE B-29 : γ / i_λ en fonction de la pression ($\gamma = 2p_2$; $\circ = 3s_2$) ($i_\lambda < 0,4 \text{ mW}$)

$$\bar{\omega} = 65 \pm 10 \text{ MHz/mk}$$

(B,64)

C'est cette valeur qui nous servira pour interpréter les résonances de saturation (*)

III.3 - Résonances de saturation des niveaux 3s₂ et 2p₂. Interprétation des résultats à faible pression

Comme le prédit la théorie, la composante π des raies de fluorescence des niveaux 3s₂ et 2p₂ présente une résonance de saturation centrée en champ nul (voir figure B-30). Nous allons nous intéresser plus particulièrement à deux grandeurs :

- 1) l'amplitude de la résonance de saturation, qui est définie par (éq. (B,21)) :

$$\mathcal{S}_{bg} = \frac{L_{bg}^{\pi}(H_{\infty}) - L_{bg}^{\pi}(H=0)}{L_{bg}^{\pi}(H_{\infty})} \quad (\text{B,65})$$

L'expression théorique de \mathcal{S} est donnée par l'équation II-66.

- 2) la forme de cette résonance qui, en règle générale, est donnée par la somme de deux contributions proportionnelles aux effets Hanle des niveaux 3s₂ et 2p₂ :

$$L_{bg}^{\pi}(H) \propto 1 - \mathcal{S}_{bg}^{(b)} L_b^2(H) - \mathcal{S}_{bg}^{(a)} L_a^2(H) \quad (\text{B,66})$$

$L_b^2(H)$ représente l'effet Hanle de β normalisé à 1 (éq. II-27). Les coefficients $\mathcal{S}_{bg}^{(\beta)}$, qui sont déterminés à partir des équations II-64-65-66, vérifient :

$$\mathcal{S}_{bg}^{(b)} + \mathcal{S}_{bg}^{(a)} = \mathcal{S}_{bg} \quad (\text{B,67})$$

Nous avons étudié les raies de fluorescence suivantes :

pour le niveau 2p ₂	{	$\lambda = 6163 \text{ \AA}$	2p ₂ → 1s ₃ (J = 0)
		$\lambda = 6599 \text{ \AA}$	2p ₂ → 1s ₂ (J = 1)
		$\lambda = 5881 \text{ \AA}$	2p ₂ → 1s ₅ (J = 2)

(*) La valeur maximum de γ est de l'ordre de 30 MHz, c'est-à-dire 8 fois plus forte que pour la raie 7305 Å. Ce rapport ne peut pas s'expliquer à l'aide du seul rapport des éléments de matrice du dipôle optique qui est de l'ordre de 2,7 (l'étude théorique du néon [6] donnant 4 comme rapport des probabilités de transition). On en déduit donc que la densité d'énergie lumineuse est beaucoup plus importante pour la raie 6401 Å que pour la raie 7305 Å, ce qui était prévisible, vue la configuration de cavité adoptée pour la raie 6401 Å qui entraîne une focalisation du faisceau au niveau de la cellule.

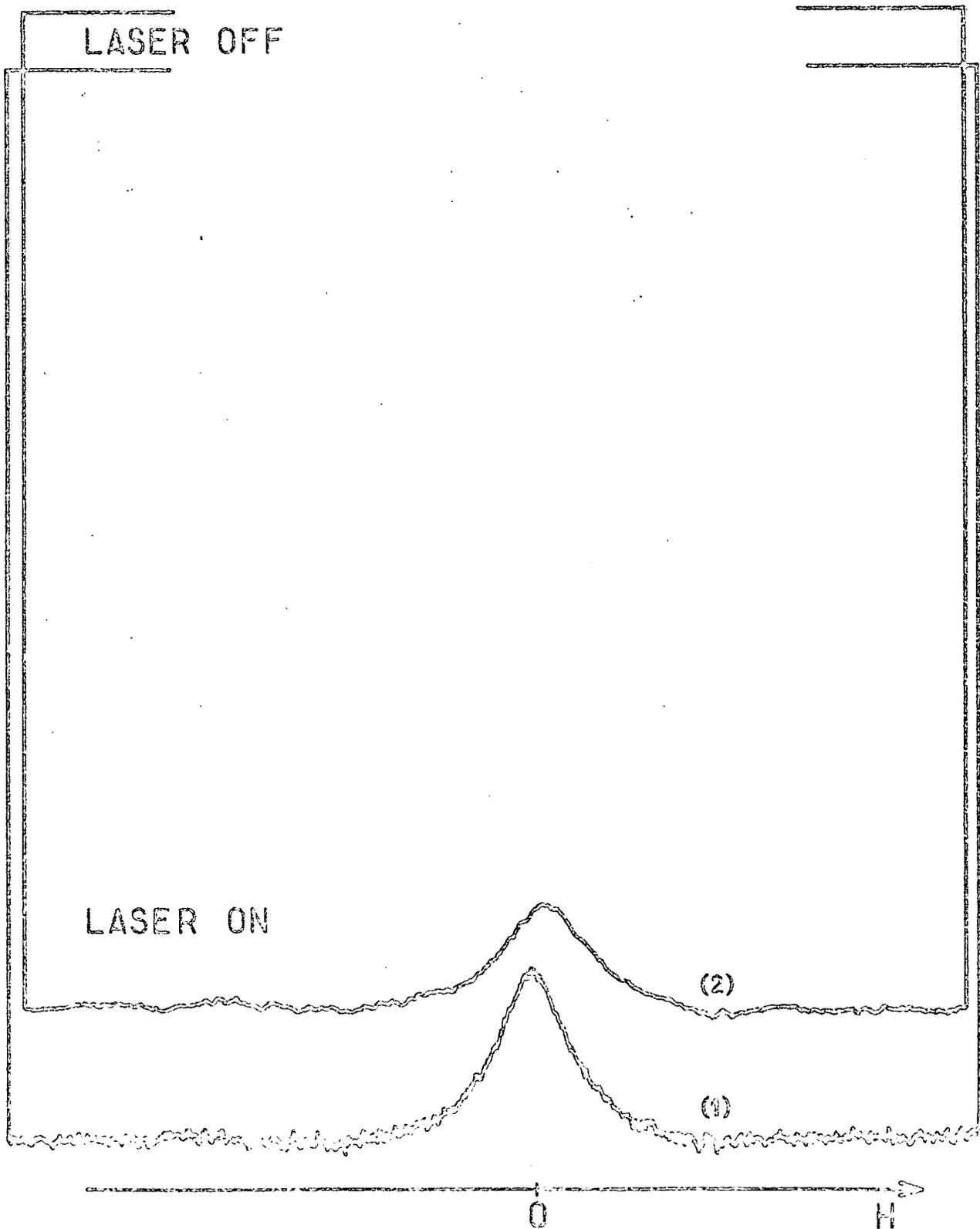


FIGURE B-20 : Variations avec le champ magnétique de la composante π des raies de fluorescence du niveau $2p_2$ (1) 6163 Å (2) 6599 Å ($p = 1,25$ torr - $i_c = 12$ mA $i_\lambda = 0,32$ mW).

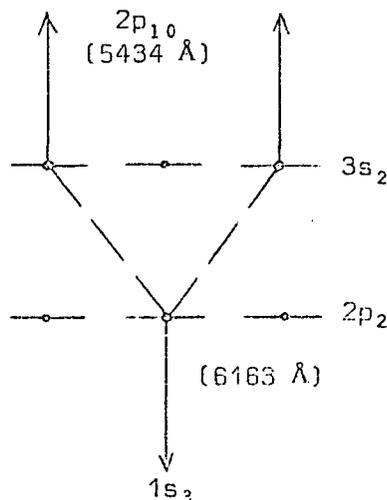
et, pour le niveau $3s_2$

$$\left\{ \begin{array}{ll} \lambda = 7305 \text{ \AA} & 3s_2 \rightarrow 2p_1 \quad (J = 0) \\ \lambda = 5434 \text{ \AA} & 3s_2 \rightarrow 2p_{10} \quad (J = 1) \\ \lambda = 6328 \text{ \AA} & 3s_2 \rightarrow 2p_4 \quad (J = 2) \end{array} \right.$$

Les figures B-31, B-32 et B-33 montrent la hauteur de saturation, en fonction de l'intensité laser, pour différentes pressions du mélange He-Ne. Les courbes sont déduites des expressions théoriques, en supposant $\omega = 65 \text{ MHz/mW}$. Les figures B-34 et B-35 montrent la forme de raie des résonances de saturation. Les points sont calculés à partir des expressions théoriques. Ces expressions sont obtenues à un facteur multiplicatif près, qui a été déterminé en ajustant la valeur théorique de $L^\pi(H_\infty)$ à la modification expérimentale de la fluorescence en champ magnétique fort. Comme on peut le voir sur les figures B-31 à B-35, il y a toujours un bon accord entre les prédictions théoriques et les résultats expérimentaux.

Les résultats obtenus à faible pression peuvent être interprétés qualitativement, si on remarque que, dans ce cas, on peut supposer, avec une bonne approximation, qu'il n'y a qu'un temps de relaxation par niveau atomique.

Alors, dans le diagramme de la transition laser tel qu'il est représenté au paragraphe III-1-a, l'ensemble des transitions représentées en pointillés ($m_b = \pm 1 \leftrightarrow m_a = 0$) est découplé de celui des transitions représentées en traits pleins ($m_b = 0 \leftrightarrow m_a = \pm 1$). La raie de fluorescence 6163 Å (transition $J = 1 \rightarrow J = 0$) qui est sensible à la population du sous-niveau $m = 0$ du niveau $2p_2$, et la raie de fluorescence 5434 Å ($J = 1 \rightarrow J = 1$), qui est sensible à la population des sous-niveaux $m = \pm 1$ du niveau $3s_2$ (puisque la composante $m = 0 \rightarrow m = 0$ d'une transition $J = 1 \rightarrow J = 1$ est interdite) sont toutes deux rattachées à l'ensemble des transitions en pointillés.



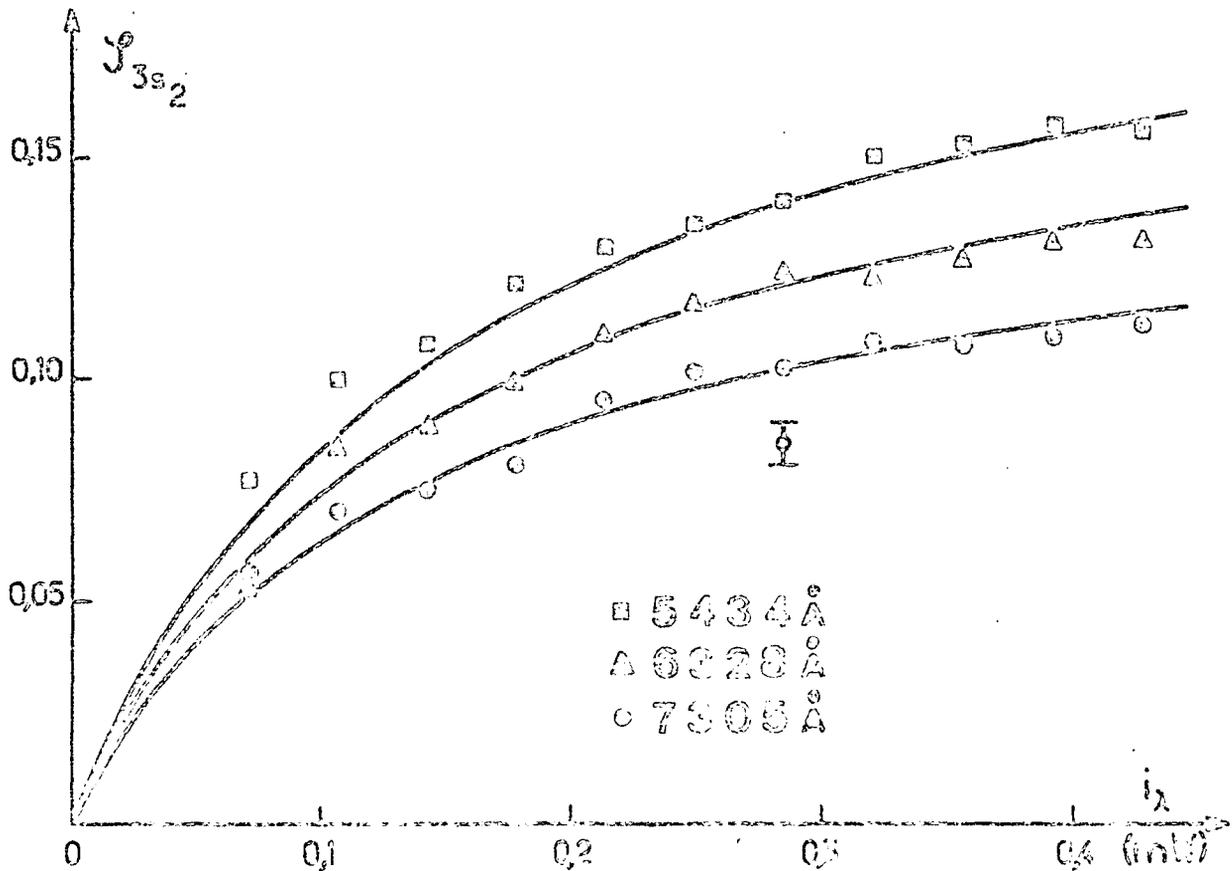
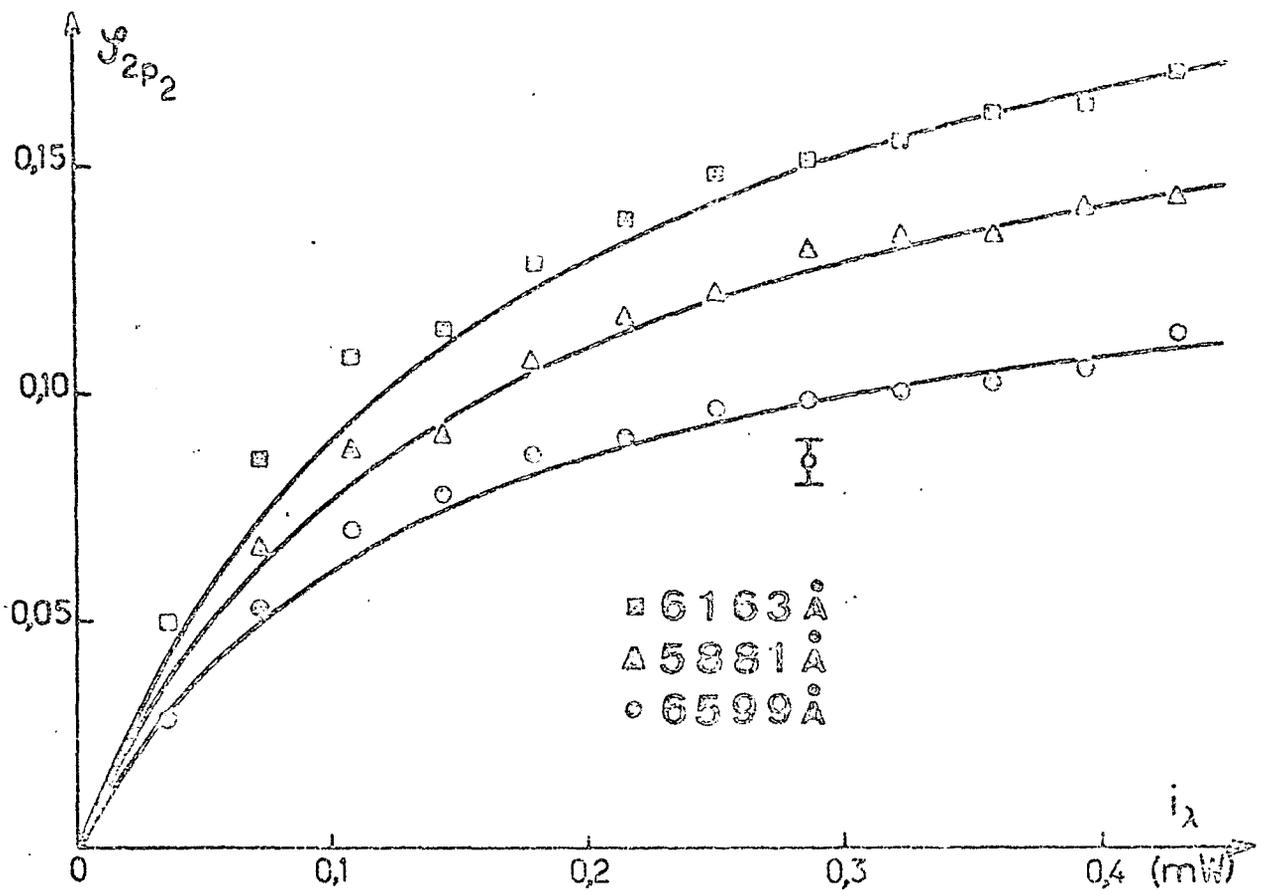


FIGURE N-31 : Amplitude de la résonance de saturation des niveaux $2p_2$ et $3s_2$ en fonction de l'intensité laser. Les courbes sont déduites des calculs théoriques en supposant $\gamma/i_\lambda = 65 \text{ MP}_2/\text{mW}$ (10% He - 90% He - p = 1,25 torr - $i_c = 12 \text{ mA}$).

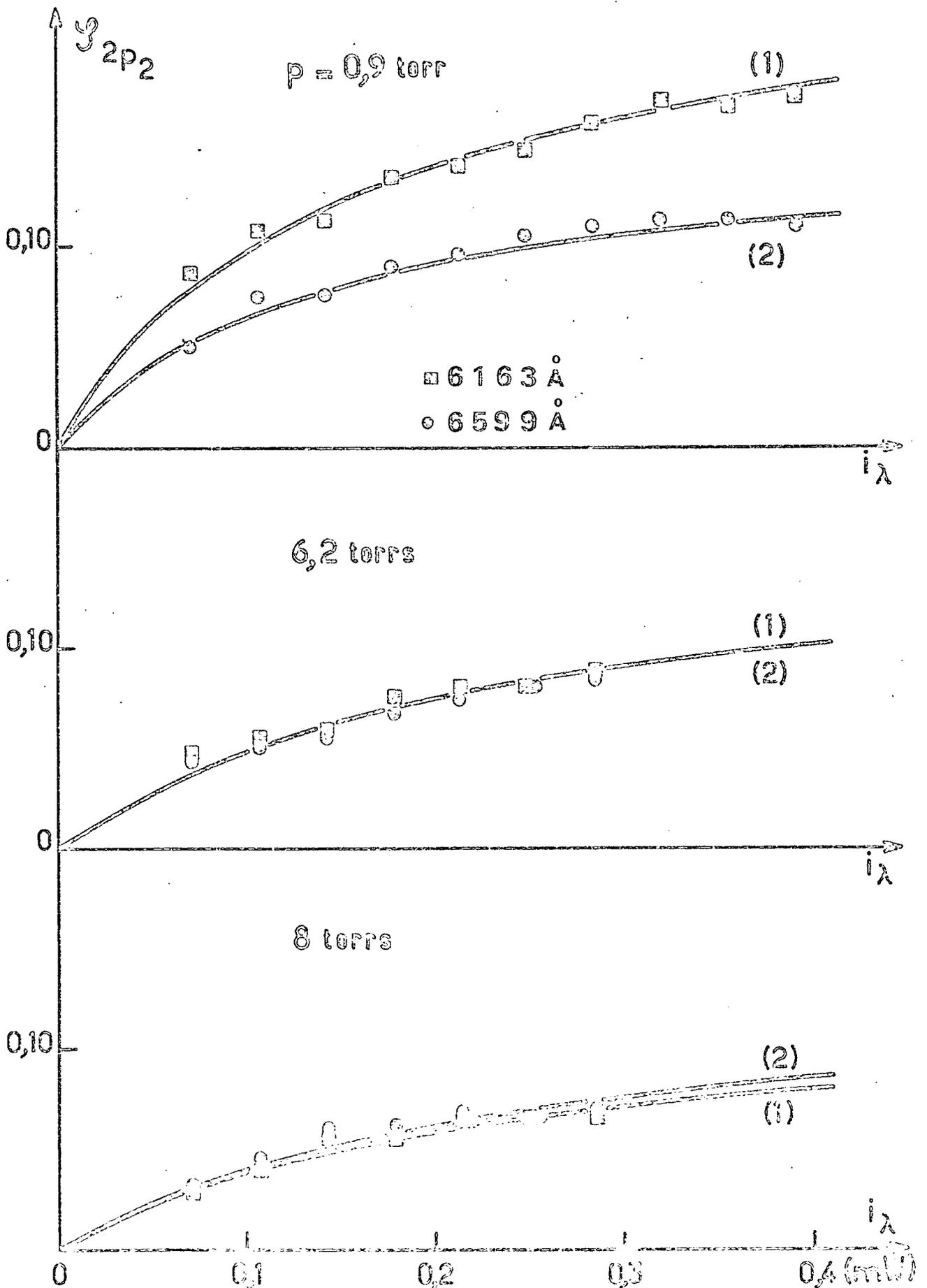


FIGURE B-32 : Amplitude de la résonance de saturation du niveau $2p_2$ pour différentes pressions. Les courbes sont déduites des calculs théoriques

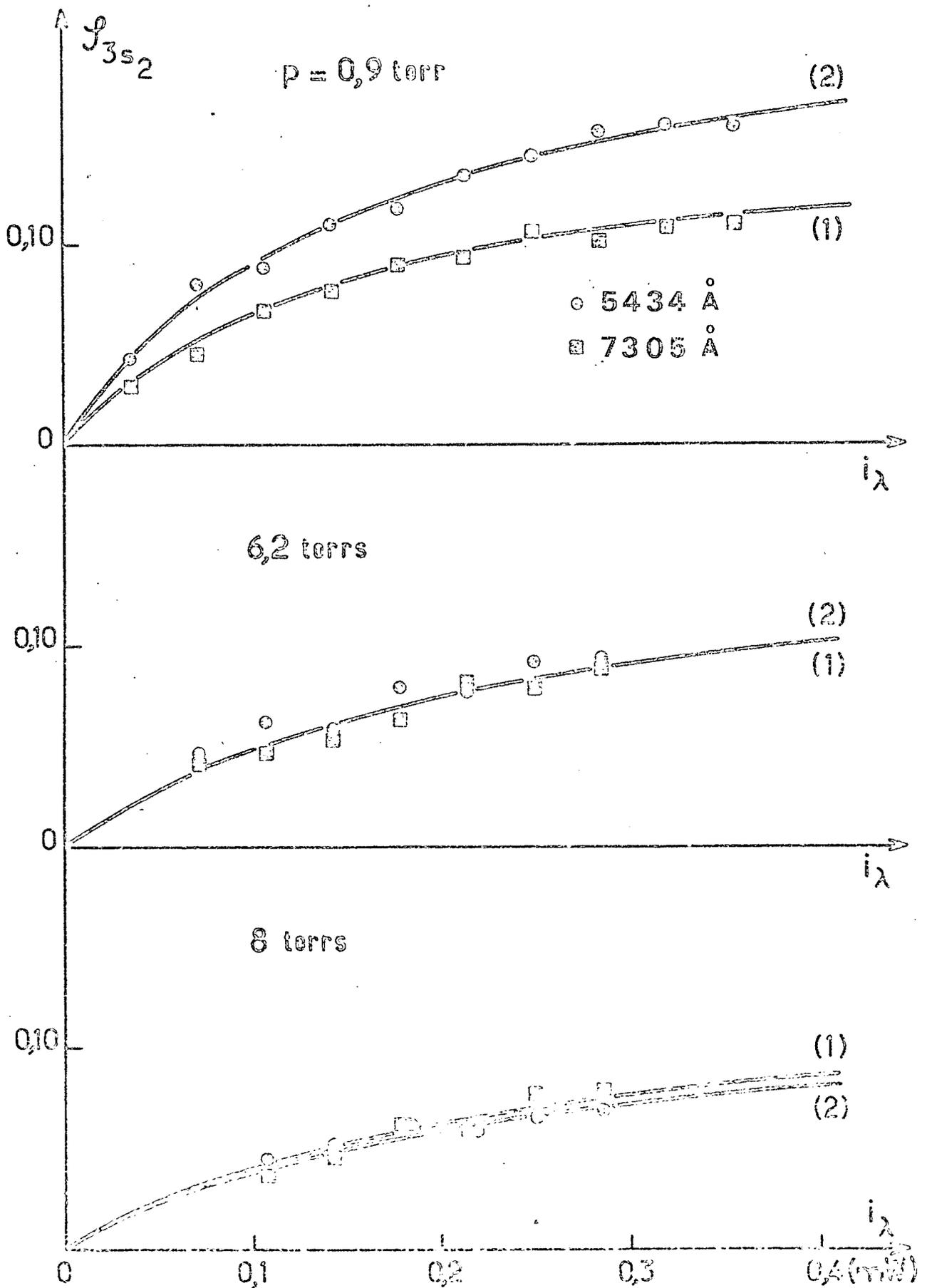
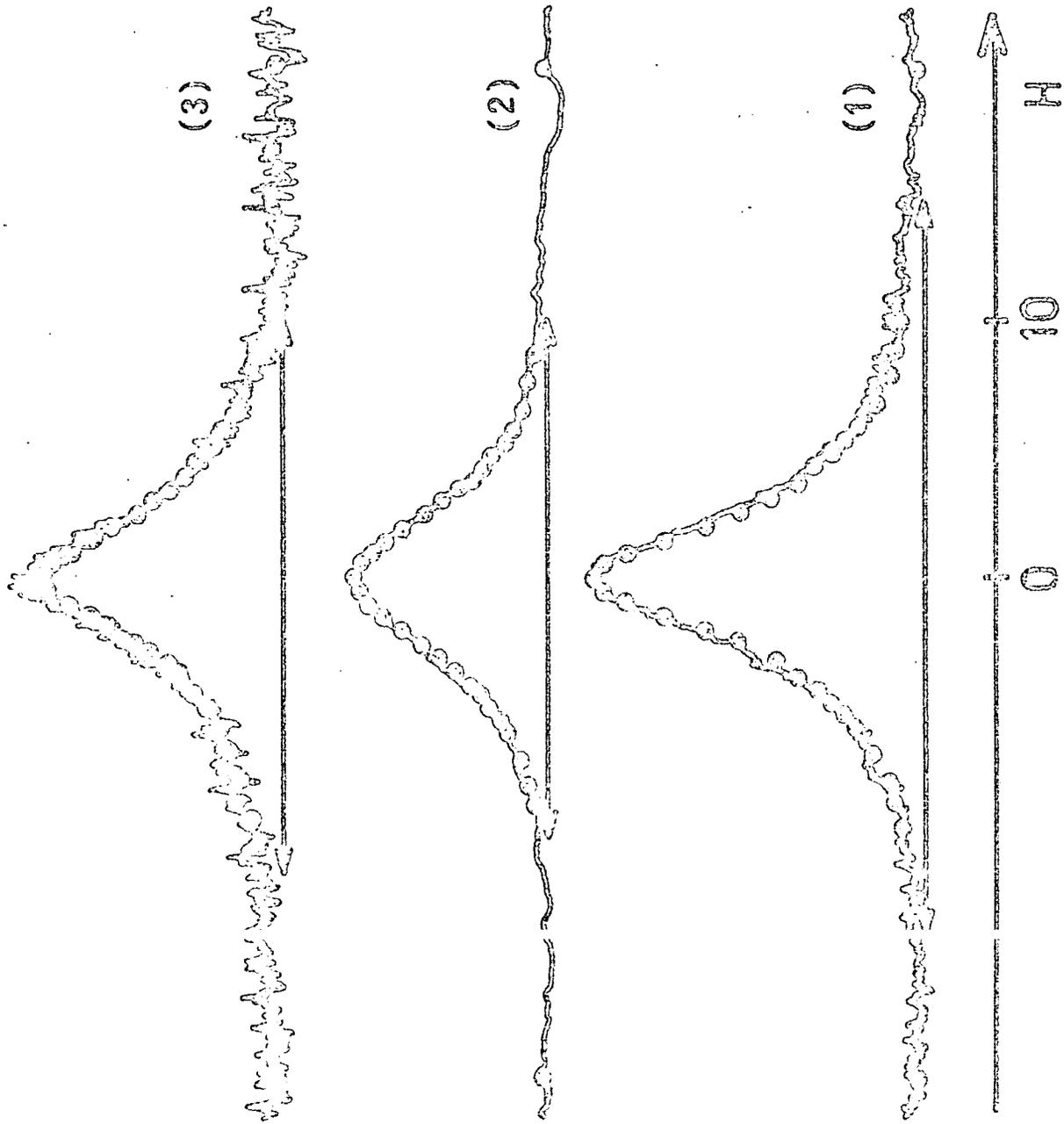


FIGURE B-33 : Amplitude de la résonance de saturation du niveau $3s_2$ pour différentes pressions. Les courbes sont déduites des calculs théoriques.



Gauss

FIGURE 3-34 : Résonance de saturation du niveau $2p_2$. (1) 6163 Å; (2) 6599 Å; (3) 5881 Å.

Les points sont déduits des calculs théoriques ($p = 1,25$ torr - $i_c = 12$ mA - $i_\lambda = 0,36$ mA).

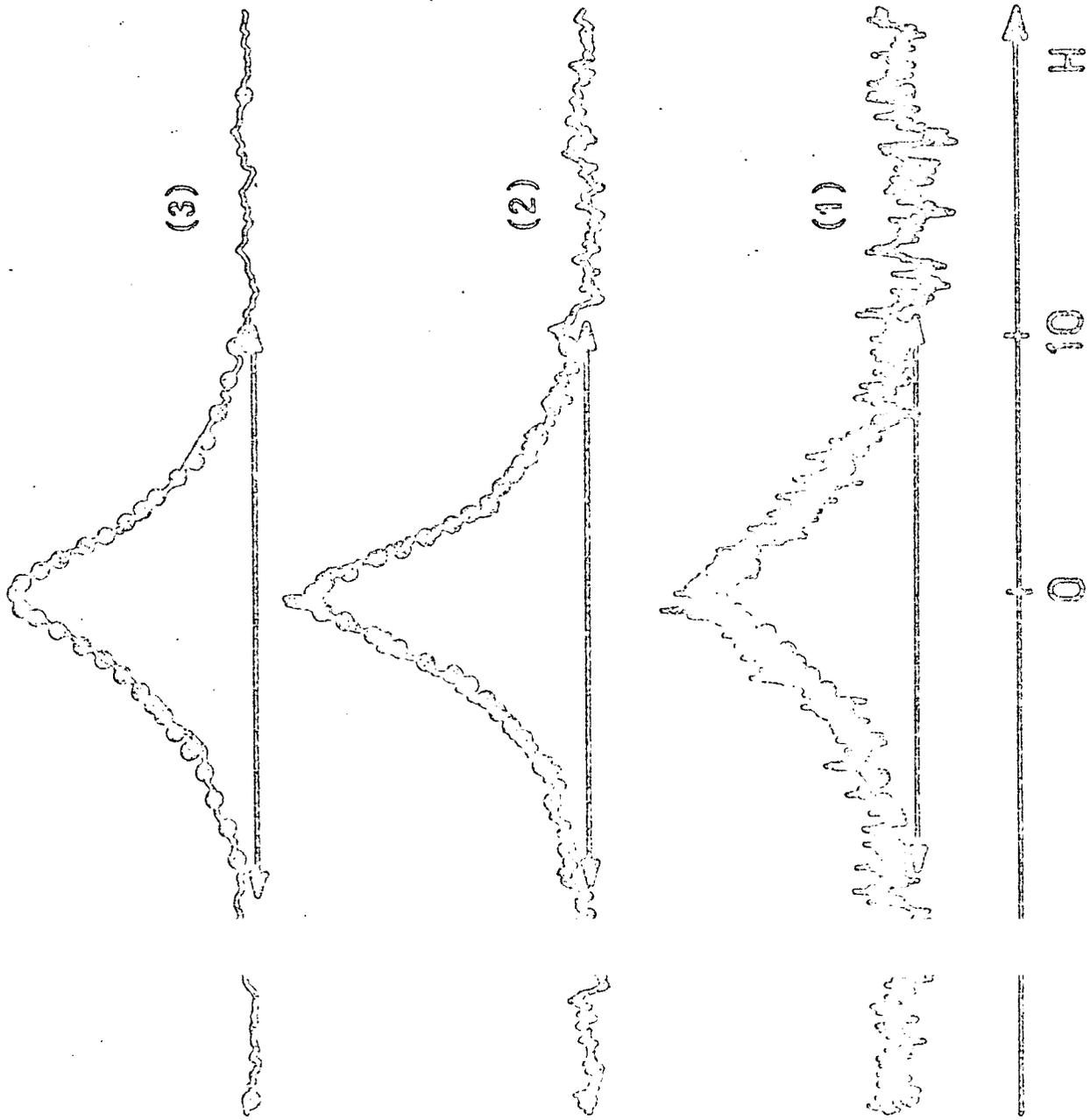


FIGURE 3-25 : Résonance de saturation du niveau $3s_2$. (1) 7305 A; (2) 5434 A; (3) 6328 A
 Les points sont déduits des calculs théoriques ($p = 1,25$ torr - $i_c = 12$ mA - $i_\lambda = 0,36$ mW)

Par suite, de la même façon que pour une transition laser $J = 1 - J = 0$, les variations d'intensité des deux raies de fluorescence seront proportionnelles, et ces deux raies présenteront la même résonance de saturation ayant la forme de l'effet Hanle du niveau $3s_2$. De même les raies 7305 Å et 6599 Å sont toutes deux rattachées à l'ensemble des transitions en traits pleins et présentent une résonance de saturation ayant la forme de l'effet Hanle du niveau $2p_2$ ^(*). Pour cette raison, on trouve théoriquement et expérimentalement que (fig. B-31, B-34, B-35) :

- 1) Les résonances de saturation des raies $\lambda = 6163$ Å et $\lambda = 5434$ Å ont approximativement la même hauteur relative et la même forme, de même que celles correspondant à $\lambda = 7305$ Å et $\lambda = 6599$ Å.
- 2) Les résonances de saturation 7305 - 6599 sont plus larges que les résonances 6163 - 5434, car l'effet Hanle du niveau $2p_2$ est plus large que celui du niveau $3s_2$.
- 3) Les résonances 7305 - 6599 sont plus petites que les résonances 6163 - 5434, car le niveau $2p_2$ a une durée de vie plus courte que celle du niveau $3s_2$, ce qui entraîne, à intensité laser donnée, des effets de saturation moins importants. Par ailleurs, quand on augmente la pression, les durées de vie des deux niveaux diminuent à cause des collisions atomiques et, par suite, l'importance des effets de saturation diminue, comme on peut le voir sur les figures B-32 et B-33.
- 4) Enfin les résonances de saturation des raies $\lambda = 6328$ Å et $\lambda = 5881$ Å sont similaires (forme et largeur). La raie $\lambda = 6328$ Å, qui correspond à une transition $J = 1 \rightarrow J = 2$, n'est pratiquement sensible qu'à la population globale du niveau $3s_2$ (en effet, les probabilités relatives des transitions π sont 3 - 4 - 3 pour les sous-niveaux $m = -1, 0$ et 1). De même la raie $\lambda = 5881$ Å n'est pratiquement sensible qu'à la population globale du niveau $2p_2$. Or la conservation du nombre total d'atomes dans l'interaction laser - milieu atomique entraîne que les modifications des populations des niveaux $3s_2$ et $2p_2$ par le laser sont proportionnelles, indépendamment de la valeur du champ magnétique (cf. équation II-5). Les résonances de saturation sur les populations globales des niveaux $2p_2$ et $3s_2$ sont donc identiques.

Tous les résultats ci-dessus ne sont qu'approximatifs, car les collisions dépolarisantes et surtout la diffusion multiple couplent partiellement les

(*) Ces arguments, qui sont valables quelle que soit l'intensité laser, généralisent à un ordre de perturbation quelconque une interprétation physique des résonances de saturation donnée précédemment par DUMONT [10] pour le quatrième ordre de perturbations.

transitions en traits pleins et celles en pointillés du diagramme du paragraphe III-1-a. A forte pression, le couplage par collisions augmente et les résultats ne peuvent plus s'interpréter aussi simplement. Nous discuterons certains de ces résultats au paragraphe suivant.

III.4 - Variation de l'intensité des raies de fluorescence : mise en évidence du moment quadrupolaire optique induit par l'irradiation laser sur la transition $3s_2 - 2p_2$

Pour finir, nous allons nous intéresser à la grandeur $F(\beta, 1, 0; H)$ qui définit le rapport des modifications de fluorescence π induites par le laser sur deux raies $J_\beta \rightarrow J_f = 1$ et $J_\beta \rightarrow J_f = 0$ (voir le paragraphe I-4 de l'Introduction de la Partie Expérimentale). De l'équation (B,22), on déduit :

$$F(\beta, 1, 0; H) = \frac{\beta \rho_0^0(H) + \frac{\sqrt{2}}{2} \beta \rho_0^2(H)}{\beta \rho_0^0(H) - \sqrt{2} \beta \rho_0^2(H)} \quad (B,68)$$

Deux grandeurs ont été plus particulièrement étudiées :

$F(3s_2, 2p_{10}, 2p_1; H)$ et $F(2p_2, 1s_2, 1s_3; H)$, pour $H = 0$ et pour $H = \infty$.

Les résultats expérimentaux sont reportés sur les figures B-36 et B-37. Pour les interpréter, nous allons utiliser les expressions théoriques (II-63) donnant les composantes longitudinales de la matrice densité (*)

$$\Gamma_b(0) \cdot \rho_b^0 = - \Gamma_a^*(0) \cdot \rho_a^0 = \frac{2\gamma}{3} X^1 \quad (B,69-a)$$

$$\Gamma_b(2) \cdot \rho_b^2 = - \frac{\gamma}{3 \sqrt{2}} (X^1 - 3X^2) \quad (B,69-b)$$

$$\Gamma_a(2) \cdot \rho_a^2 = \frac{\gamma}{3 \sqrt{2}} (X^1 + 3X^2) \quad (B,69-c)$$

où X^k est proportionnel à l'amplitude du moment multipolaire optique, d'ordre k , induit par le laser entre les niveaux a et b . X^1 correspond au moment dipolaire optique de la transition. Ce dipôle électrique apparaît au premier ordre dans un développement de perturbations en fonction du champ électrique de l'onde laser. X^2 décrit le moment quadrupolaire optique (magnétique) de la transition qui peut apparaître à partir du troisième ordre de perturbations.

(*) Dans la suite, on négligera le transfert d'alignement par émission spontanée.

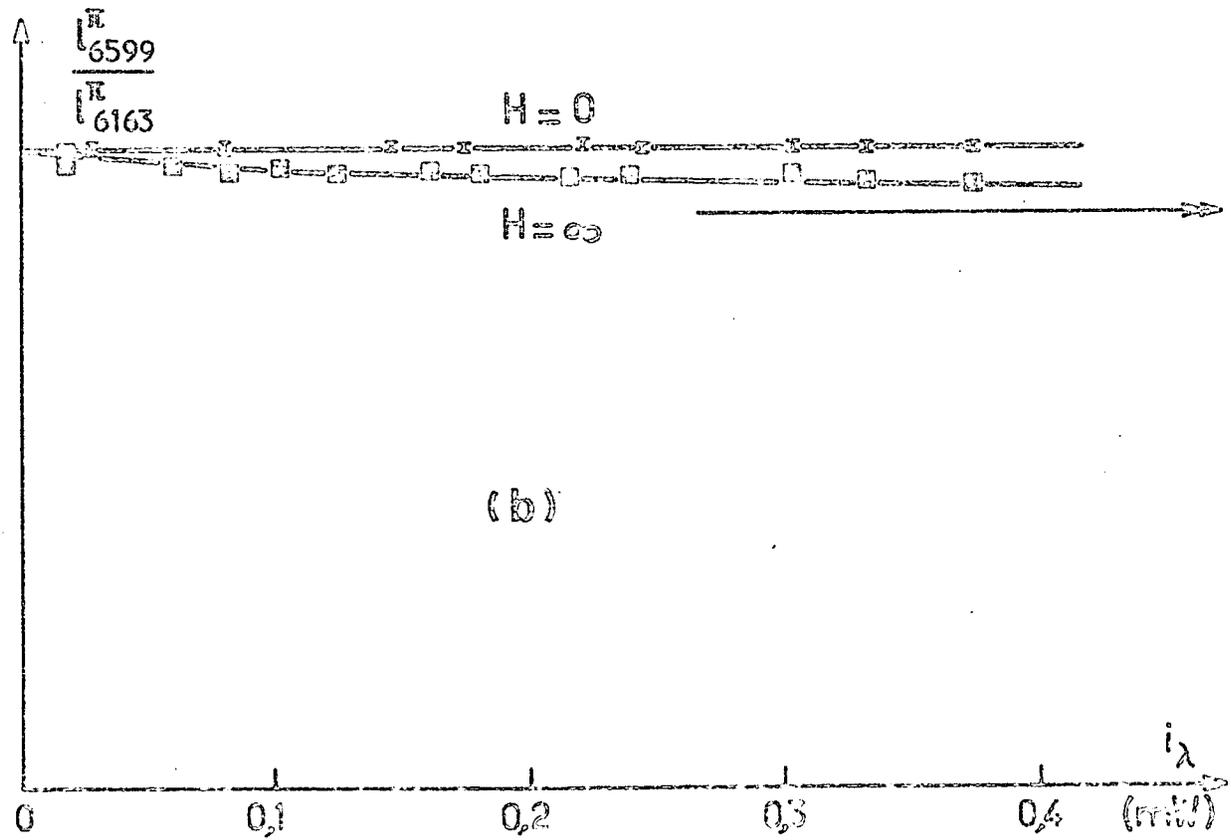
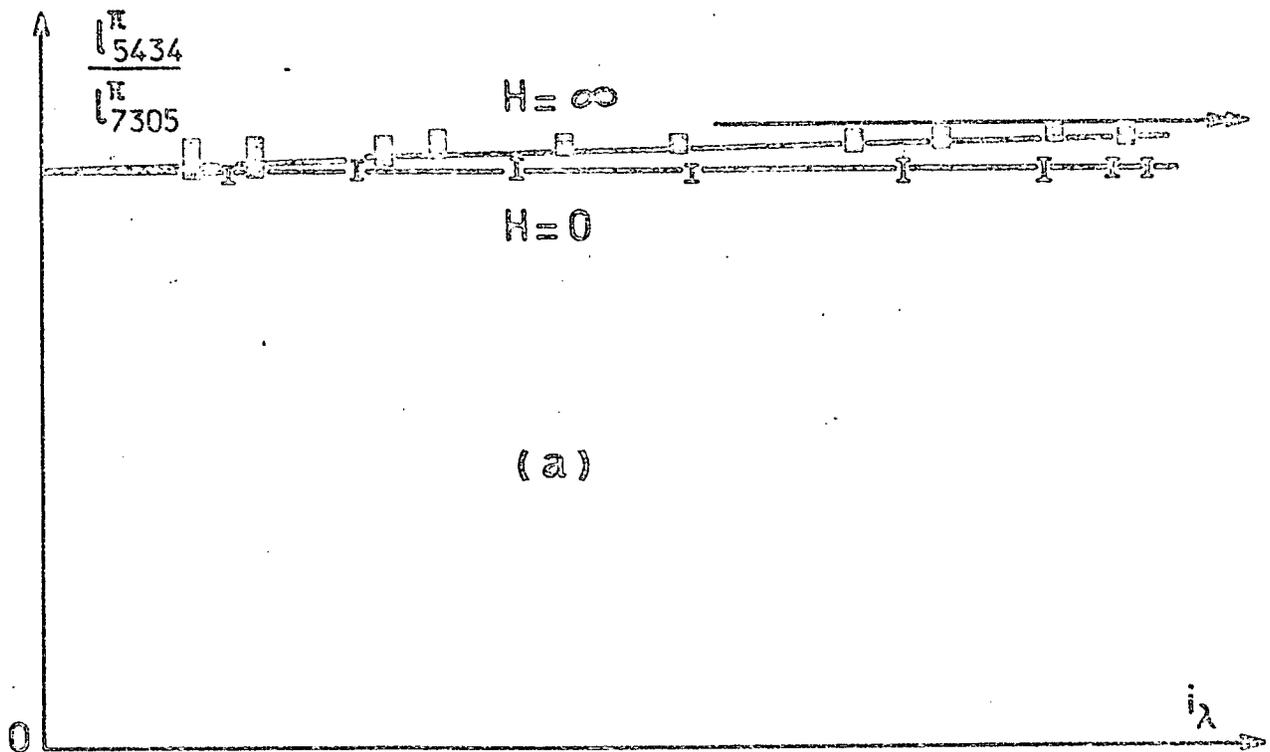


FIGURE B-36 : Rapport des intensités des composantes π de deux raies de fluorescence issues d'un même niveau (a : $3s_2$, b : $2p_2$) en fonction de l'intensité laser (10% Ne - 90% He - $p = 1,25$ torr - $i_c = 12$ mA).

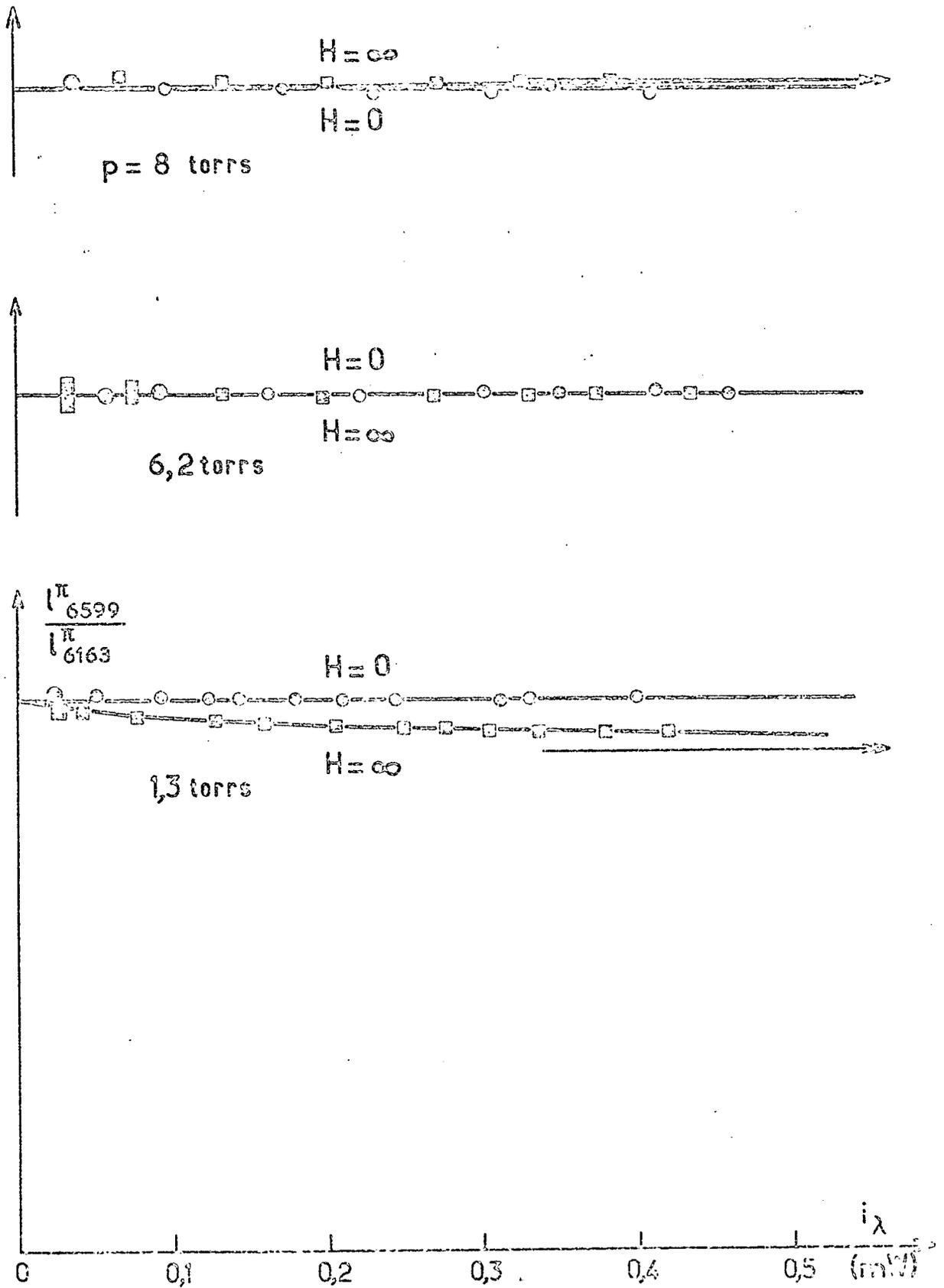


FIGURE B-37 : Rapport des intensités des composantes π de deux raies de fluorescence issues du niveau $2p_2$, pour différentes pressions.

a) $H = 0$

Pour des raisons de symétrie, en champ magnétique nul, X^2 est identiquement nul, quelle que soit l'intensité du laser. Toutes les composantes longitudinales sont proportionnelles : $F(H=0)$ est alors indépendant de i_λ , ce qui est très bien vérifié expérimentalement, comme on le voit sur les figures B-36 et B-37. Remarquons que cette annulation de X^2 en champ nul est aussi responsable de l'indépendance du taux d'anisotropie de la fluorescence, par rapport à l'intensité laser.

b) $H = \infty$

En champ magnétique fort, X^2 est en général non nul, à forte intensité laser. $F(H = \infty)$ dépend alors de l'intensité laser. A l'aide des équations II-48, on trouve que :

$$X^1(H = \infty) = - \frac{n}{\Delta \sqrt{3}} \left(1 + \gamma \frac{\tau_2^2}{4} \right) \quad (\text{B},70\text{-a})$$

et

$$X^2(H = \infty) = - \frac{n}{\Delta \sqrt{3}} \cdot \frac{\gamma \tau_2^1}{12} \quad (\text{B},70\text{-b})$$

où τ_2^1 est donné par (équ. II-42) :

$$\tau_2^1 = \frac{\Gamma_a(2) - \Gamma_b(2)}{\Gamma_a(2) \Gamma_b(2)} \quad (\text{B},71)$$

$X^2(\infty)$ est donc proportionnel à $\Gamma_a(2) - \Gamma_b(2)$. Les variations de $\Gamma_{2p_2}(2) - \Gamma_{3s_2}(2)$, déduites de l'étude de l'effet Hanle, sont reportées sur la figure B-38.

$\Gamma_{2p_2}(2) - \Gamma_{3s_2}(2)$, positif à faible pression, s'annule pour $p = 6,2$ torrs et devient négatif pour des pressions supérieures. D'où :

- 1) A faible pression, $X^2(\infty)$ est non nul pour des intensités laser assez fortes. C'est pour cette raison que $F(H=\infty)$ varie avec l'intensité laser, comme on peut le voir sur la figure B-36. Les courbes tracées sur cette figure sont calculées à partir des expressions théoriques (B,68), (B,69) et (B,70).
- 2) Pour $p = 6,2$ torrs, $X^2(\infty)$ est nul quelle que soit l'intensité laser. Alors comme le montre la figure B-37, $F(H=\infty)$ est indépendant de i_λ et égal à $F(H=0)$. Remarquons que, dans ce cas, toutes les composantes longitudinales de la matrice densité sont proportionnelles à γX^1 , en champ magnétique nul et en champ magnétique fort. Alors l'amplitude de la résonance de saturation est la même pour toutes les raies de fluorescence issues du niveau $2p_2$ et du

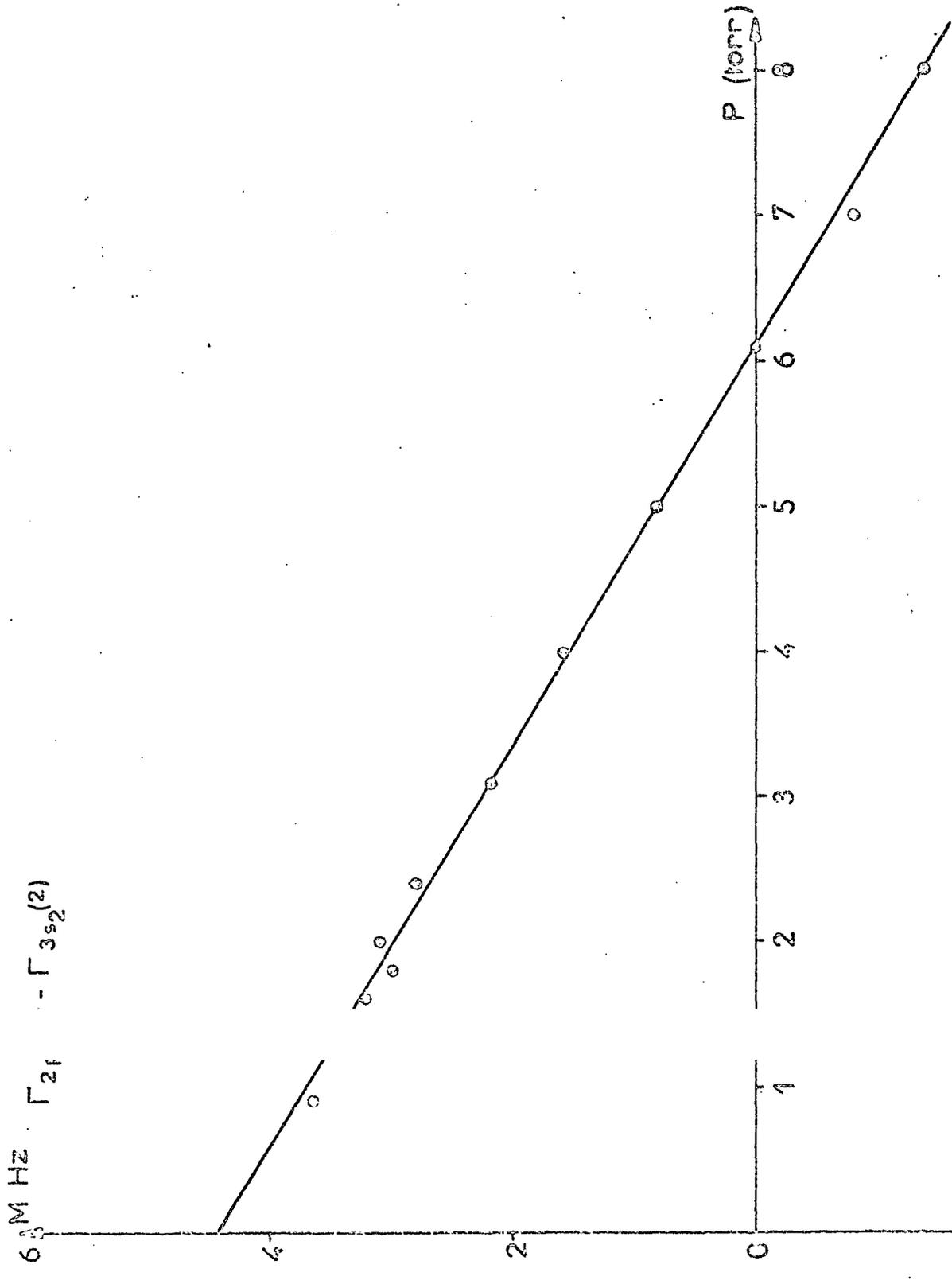


FIGURE 8 : Différence entre les taux de relaxation de l'alignement des niveaux $2p_2$ et $3s_2(2)$ en fonction de la pression (10% Ne - 90% He).

niveau $3s_2$, comme on peut le voir sur les figures B-32 et B-33 (courbes pour $p = 6,2$ torrs).

- 3) Pour $p > 6,2$ torrs, $X^2(\infty)$ change de signe avec $\Gamma_{2p_2}(2) - \Gamma_{3s_2}(2)$. Par suite $F(H=\infty) - F(H=0)$ doit aussi changer de signe. Cependant, pour ces fortes pressions, le rapport signal sur bruit devient trop mauvais pour qu'on puisse observer avec certitude ce changement de signe.

III.5 - Conclusion

Tous les effets non-linéaires observés sur la raie 6401 \AA ont été interprétés à l'aide de la théorie "Broad-Line". Deux faits importants sont à retenir.

- a) Comme pour une transition $J = 1 - J = 0$, les effets Hanle des deux niveaux de la transition ne montrent pas de déformations par rapport à une forme de Lorentz, qui soient expérimentalement observables.
- b) Contrairement à ce qui se passait pour une transition $J = 1 - J = 0$, la résonance de saturation observée sur la fluorescence π dépend de la raie de fluorescence considérée. La différence entre les amplitudes des différentes résonances est caractéristique de l'apparition, en champ magnétique non nul et à laser fort, d'un moment quadrupolaire optique induit sur la transition atomique par le laser. Par ailleurs, la forme de ces résonances de saturation n'est en général plus Lorentzienne, et est liée aux effets Hanle des deux niveaux de la transition.

IV - TRANSITIONS $J_b = 1 - J_a = 2$

Le besoin d'une étude théorique des transitions laser $J = 1 - J = 2$, qui soit valable aux fortes intensités d'irradiation s'est très vite fait sentir, car les raies les plus intenses du spectre du néon sont émises sur des transitions $J = 1 \rightarrow J = 2$. Ce sont les raies suivantes :

		(J = 1)	(J = 2)	
{	$\lambda = 3,39 \mu$	transition	$3s_2 \rightarrow 3p_4$	
	$\lambda = 6328 \text{ \AA}$		$3s_2 \rightarrow 2p_4$	
	$\lambda = 1,15 \mu$		$2s_2 \rightarrow 2p_4$	(*)

L'intensité de ces raies est due à la conjonction de plusieurs phénomènes.

- a) Les niveaux $3s_2$ et $2s_2$ sont en coïncidence énergétique avec les niveaux métastables 2^1S_0 et 2^3S_1 de l'hélium. Ces états métastables fortement peuplés transfèrent leur excitation au néon par collisions.
- b) Dans les conditions expérimentales usuelles (pression de néon assez forte pour que les raies de résonance soient complètement réabsorbées dans le gaz), les durées de vie des niveaux $3s_2$ (~ 60 ns) et $2s_2$ (~ 40 ns) sont beaucoup plus longues que celles des niveaux $3p_4$ et $2p_4$ (~ 18 ns).
- c) Parmi les transitions issues des niveaux $2s_2$ et $3s_2$, les probabilités des transitions vers le niveau $3p_4$ et le niveau $2p_4$ sont les plus fortes ($5,9 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ pour $3,39 \mu$; $3,4 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ pour 6328 \AA et $11,4 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ pour $1,15 \mu$, valeurs qu'on peut comparer à $0,3 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ pour 7305 \AA et $1,2 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ pour 6401 \AA).

Pour ces différentes raisons, les raies 6328 \AA et $1,15 \mu$ qui sont très intenses ont été utilisées pour les premières études expérimentales du pompage optique du néon utilisant une source laser [1] : ceci montre l'importance d'une théorie non-perturbative de ces transitions.

La différence fondamentale entre les transitions $J = 1 - J = 2$ et celles que nous avons précédemment étudiées ($J = 1 - J = 0$ et $J = 1 - J = 1$) réside dans le fait qu'il existe des grandeurs atomiques caractéristiques de la réponse non-linéaire. En effet, pour les transitions $1 - 0$ et $1 - 1$, les grandeurs tensorielles qui sont créées par l'irradiation laser (population - orientation - alignement) apparaissent toutes dès le second ordre de perturbations (réponse linéaire). Par contre, dans un niveau de moment cinétique $J_a = 2$, il est possible

(*) La raie $\lambda = 1,15 \mu$ a d'ailleurs été la première émission laser observée en continu [21]

de créer des observables atomiques d'ordre tensoriel élevé (strictement supérieur à 2). En particulier, si le laser est linéairement polarisé, il apparaîtra au quatrième ordre de perturbations un tenseur d'ordre $k = 4$ ($\rho_0^4, \rho_{\pm 2}^4, \rho_{\pm 4}^4$). Il s'agit d'un moment hexadécapolaire électrique qui représente une des caractéristiques principales de la réponse non-linéaire du milieu atomique. Nous verrons au paragraphe IV-4 que l'observation d'un tel moment hexadécapolaire sur la fluorescence mettra en jeu des effets non-linéaires d'ordre élevé (ordres 6 et supérieurs à 6). Lorsque l'intensité laser est assez forte pour que ce moment hexadécapolaire soit induit dans le milieu atomique, on peut alors envisager de mesurer son temps de relaxation. Cette mesure, qui est discutée au paragraphe IV-5, apporterait des informations sur la forme de l'interaction mise en jeu dans les collisions atomiques. Auparavant, nous étudierons, à la lumière de l'étude théorique de l'article II (paragraphe V), un certain nombre de résultats expérimentaux précédemment obtenus par DECOMPS [1].

IV.1 - Etude de la grandeur $F(a,2,1)$ sur la fluorescence π du niveau $2p_n$

$F(a,2,1)$, qui définit le rapport des intensités des raies de fluorescence $J_a \rightarrow J_f = 2$ et $J_a \rightarrow J_f = 1$, est obtenue à partir de la formule (B,22) :

$$F(a,2,1; H) = \frac{\sqrt{10} \rho_0^0(H) + \sqrt{7} \rho_0^2(H)}{\sqrt{10} \rho_0^0(H) - \sqrt{7} \rho_0^2(H)} \quad (B,72)$$

Cette formule se met sous la forme :

$$F(a,2,1; H) = \frac{1 + \frac{7}{20} \cdot \frac{\Gamma_a^*(0)}{\Gamma_a^*(2)} \cdot Y_a(H)}{1 - \frac{7}{20} \cdot \frac{\Gamma_a^*(0)}{\Gamma_a^*(2)} \cdot Y_a(H)} \quad (B,73)$$

où $\Gamma_a^*(0)$ et $\Gamma_a^*(2)$ définissent la relaxation du niveau a pondérée par les effets de cascade sur la transition $b - a$ (voir partie théorique, équ. II-30 et II-73) et Y_a est défini par :

$$Y_a(H) = 2 \sqrt{\frac{10}{7}} \frac{\Gamma_a^*(2)}{\Gamma_a^*(0)} \cdot \frac{\rho_0^2(H)}{\rho_0^0(H)} \quad (B,74)$$

Quelle que soit la valeur du champ magnétique, Y_a tend vers 1 quand l'intensité laser tend vers 0. En champ magnétique nul, on peut déduire Y_a des équations II-72 - II-74 :

$$Y_a(0) = \frac{1 + \frac{8\gamma}{35} \left[\frac{1}{\Gamma_a(4)} + \frac{1}{\Gamma_b^*(2)} \right]}{1 + \frac{8\gamma}{35} \left[\frac{1}{\Gamma_a(4)} + \frac{21}{20} \tau_3^3 \right]} \quad (B,75)$$

avec $\Gamma_b^*(2) = \Gamma_b(2) - \frac{\gamma_{ba}}{10}$ (B,76)

et

$$\tau_3^3 = \frac{1}{\Gamma_b(2)} + \frac{1}{21 \Gamma_a(2)} - \frac{\gamma_{ba}}{10 \Gamma_a(2) \Gamma_b(2)} \quad (B,77)$$

$1/\Gamma_a(4)$ est le temps de relaxation hexadécapolaire du niveau a. $F(H=0)$ est donc une fonction homographique de γ .

En champ magnétique fort, Y_a est déduit des formules II-95 et II-A-18 et A-19 :

$$Y_a(\infty) = \frac{\xi_a^2}{\left(1 - \frac{\gamma_{ba}}{10 \Gamma_b(2)} \right) \xi^0} \quad (B,78)$$

c'est-à-dire :

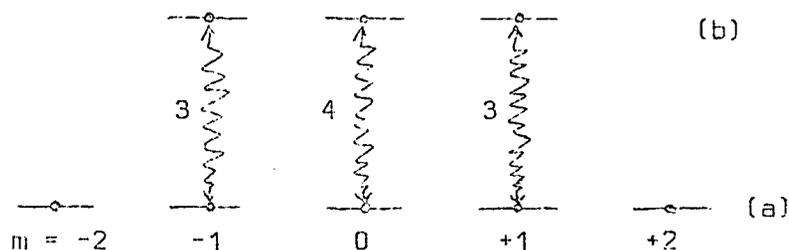
$$Y_a(\infty) = \frac{1 + \frac{\gamma}{70} \left[\frac{13}{\Gamma_b^*(2)} + \frac{6}{\Gamma_a(4)} \right] + \frac{\gamma^2}{350 \Gamma_a(4) \Gamma_b^*(2)}}{1 + \frac{\gamma}{10} \left[\frac{6}{7 \Gamma_a(4)} + \frac{7 \tau_2^2}{6} + \frac{8 \tau_3^3}{5} \right] + \frac{\gamma^2}{100} \left[\frac{\tau_2^2}{\Gamma_a(4)} + \frac{48}{35 \Gamma_a(2) \Gamma_b(2)} \right]} \quad (B,79)$$

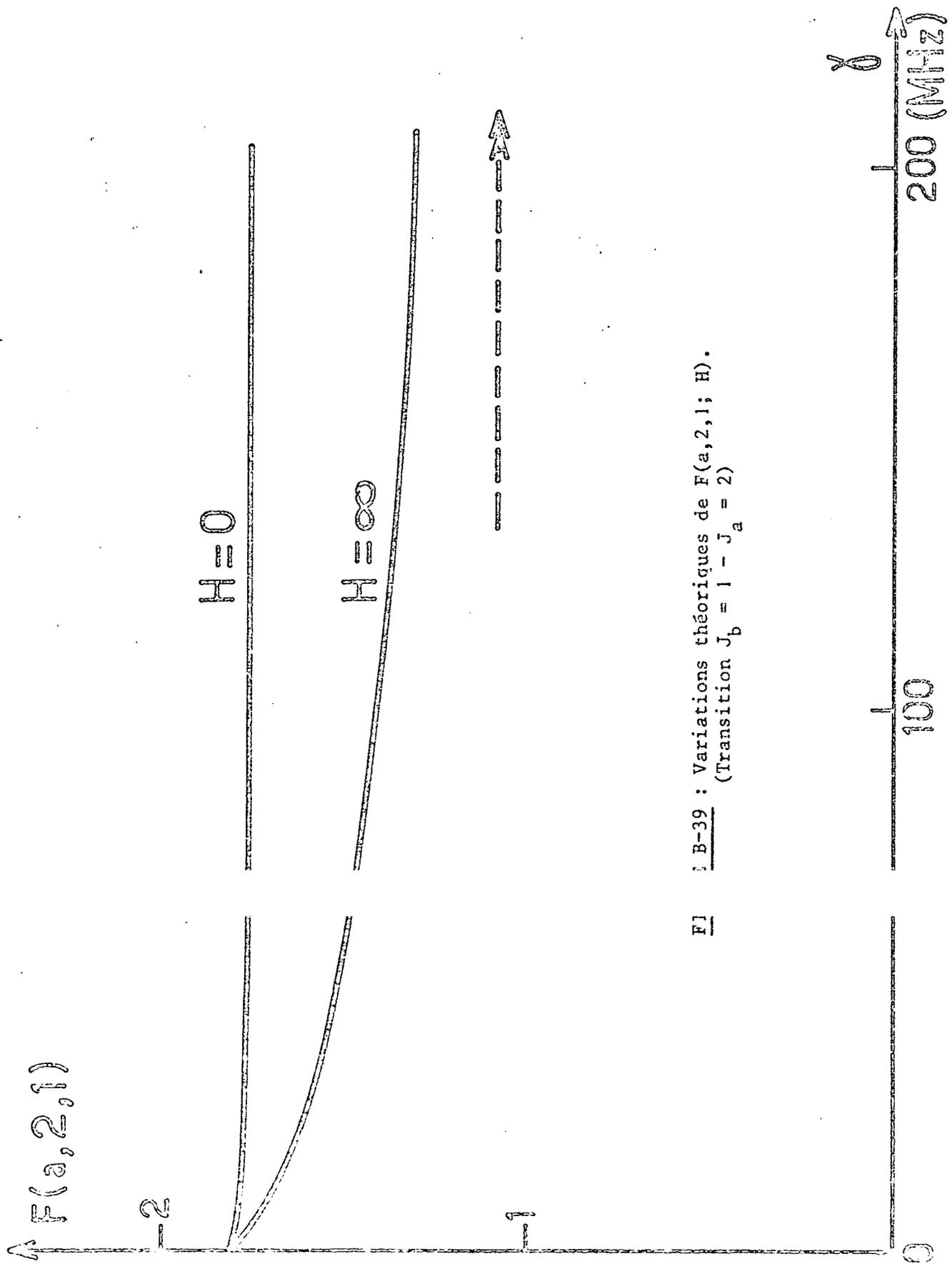
avec :

$$\tau_2^2 = \frac{3}{7 \Gamma_b(2)} + \frac{1}{\Gamma_a(2)} - \frac{3 \gamma_{ba}}{10 \Gamma_a(2) \Gamma_b(2)} \quad (B,80)$$

Les variations théoriques de $F(H=0)$ et de $F(H=\infty)$ sont reportées sur la figure B-39, pour des valeurs des temps de relaxation des niveaux correspondant à peu près à la transition $3s_2-2p_4$ dans 1,5 torr de néon (cf. les conditions expérimentales exposées dans la note (16) de l'article II).

$F(H=0)$ ne varie pratiquement pas avec le taux de pompage (2,4% de variations entre $\gamma = 0$ et $\gamma = \infty$). Ceci peut s'interpréter à l'aide du diagramme de la transition laser (l'axe de quantification est choisi le long de la polarisation du laser) :





F1 B-39 : Variations théoriques de $F(a, 2, 1; H)$.
 (Transition $J_b = 1 - J_a = 2$)

Les probabilités relatives des transitions π sont 3, 4 et 3, et sont donc pratiquement égales. Si elles étaient effectivement égales, les modifications de populations des différents sous-niveaux de b seraient égales (pas d'alignement dans le niveau b) et les modifications de population des différents sous-niveaux de a seraient proportionnelles, quelle que soit l'intensité du laser ^(*). Donc ${}_a\rho_0^2$ et ${}_a\rho_0^0$ seraient proportionnels, ce qui entraînerait l'indépendance de $F(H=0)$ par rapport à γ . Comme les probabilités de transitions π sont légèrement différentes, F varie un peu avec γ . Ce raisonnement n'est évidemment valable qu'en champ magnétique nul (où il est possible de prendre l'axe de quantification suivant la polarisation du laser). En champ fort, $F(H=\infty)$ présente des variations importantes avec γ . Les prédictions théoriques de la figure B-39 sont en accord qualitatif avec les variations expérimentales observées par DECOMPS [1] sur le niveau $2p_4$ pompé optiquement par la raie 6328 Å (figure B-40). Le laser utilisé dans ces expériences étant de faible intensité, le taux de pompage de la raie 6328 Å ne dépasse pas 10 MHz. Ceci explique les variations relativement faibles de $F(H=\infty)$.

IV.2 - Taux d'anisotropie de la fluorescence du niveau $2p_4$

Le taux d'anisotropie en champ magnétique nul de la fluorescence du niveau a est obtenu à partir des relations II-72 - 74 - 75 :

$$|R_{af}| = \frac{3Y_a(0)}{\frac{40}{7} \cdot \frac{\Gamma_a^*(2)}{\Gamma_a^*(0)} - A_f \cdot Y_a(0)} \quad (B,81)$$

avec $A_f = -1, 1$ ou $-\frac{2}{7}$ si $J_f = 1, 2$ ou 3 . $Y_a(0)$ est défini par (B,75). Comme le montre la figure 5 de l'article II, R_{af} , comme $F(H=0)$, est pratiquement indépendant de γ . L'interprétation physique de ce résultat, qui a été observé expérimentalement sur la raie laser $\lambda = 6328$ Å (figure B-41), est identique à celle présentée dans le paragraphe précédent (probabilités de transitions π sensiblement égales).

(*) En toute rigueur, ce n'est vrai que s'il n'y a pas de collisions dépolarisantes dans le niveau a.

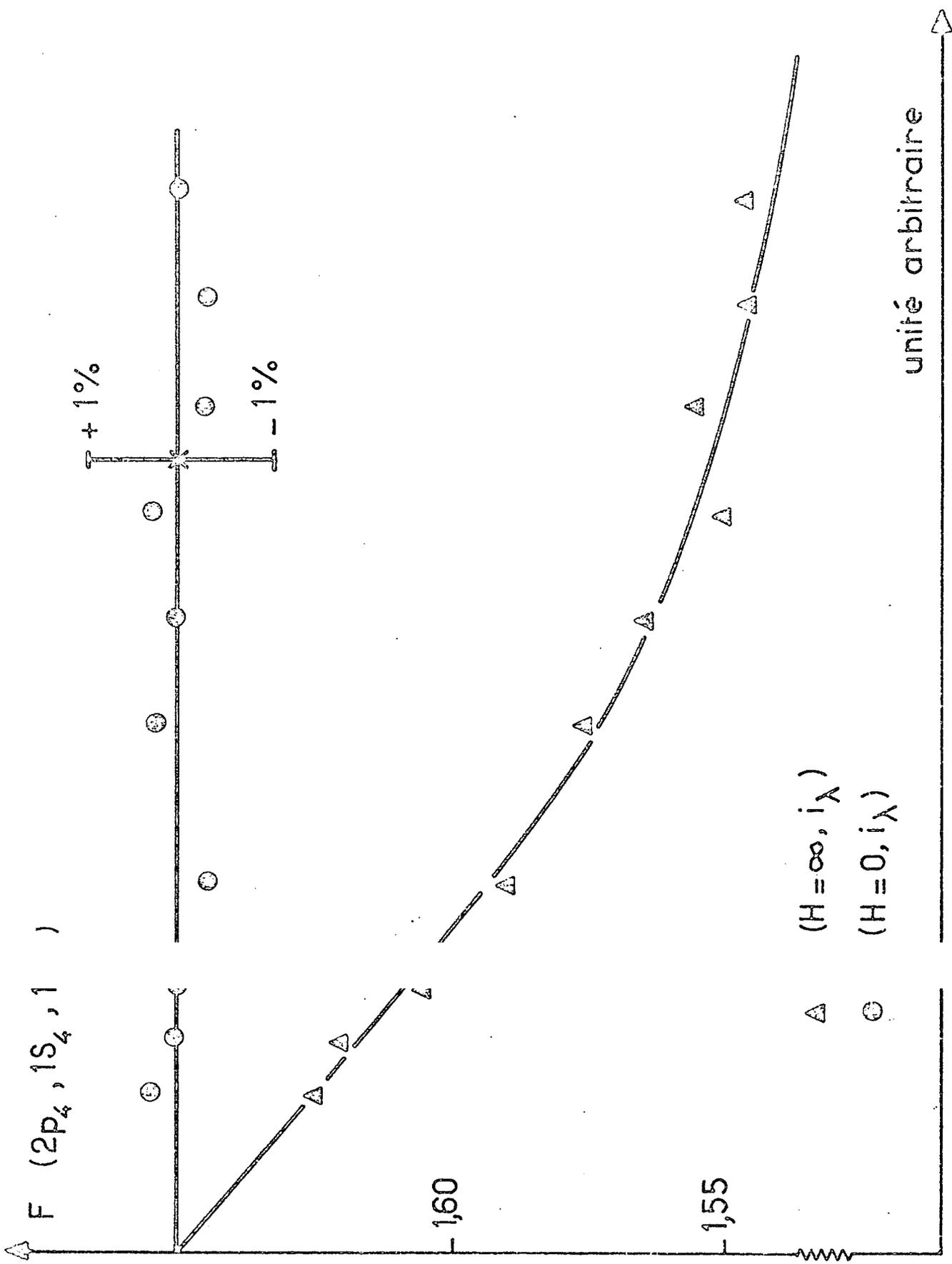


FIGURE B-40 : Détermination expérimentale de $F(H)$ relatives au niveau $2p_4$, en fonction de l'intensité de la raie i_λ pour $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ - 20% Ne - 80% He; $p = 1,55 \text{ torr}$ (cf. réf. [1])

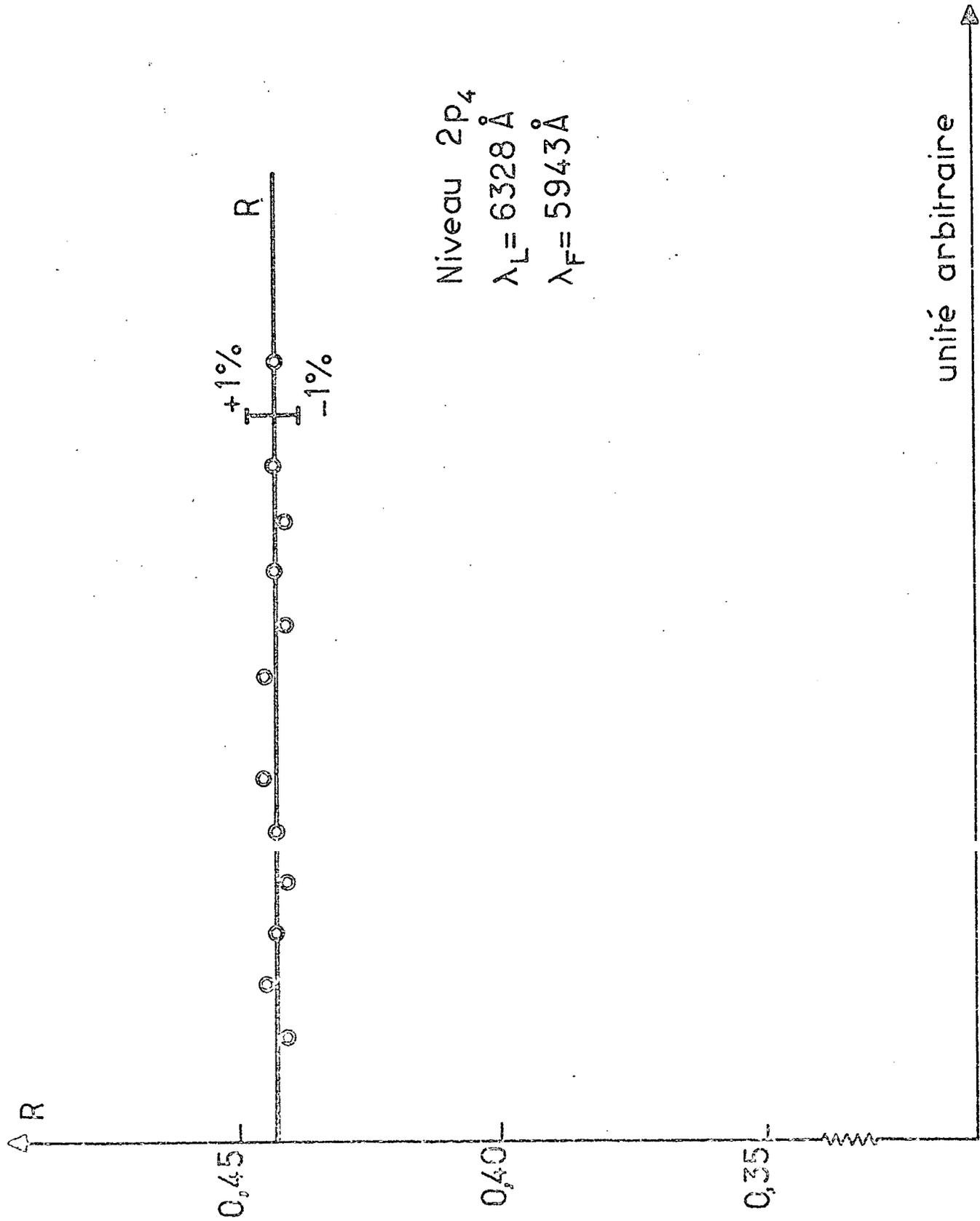


FIGURE B-41 : Taux d'anisotropie de la raie de fluorescence $\lambda_F = 5944 \text{ \AA}$ en fonction de l'intensité laser à 6328 \AA (20% Ne - 80% He; $p = 1,30 \text{ torr}$; $i_c = 7 \text{ mA}$) cf. réf. [1]

IV.3 - Effet Hanle du niveau $2p_4$

L'étude théorique montre que l'alignement du niveau b et le moment hexadécapolaire du niveau a sont beaucoup plus faibles que l'alignement créé dans le niveau a. Pour cette raison, dans l'effet Hanle de a, les couplages induits par le laser entre ces observables sont très faibles et n'entraînent pas de déviations importantes de la forme de raie de l'effet Hanle par rapport à une forme de Lorentz. Cette forme Lorentzienne de l'effet Hanle a été observée expérimentalement par DECOMPS [1] sur le niveau $2p_4$ pompé optiquement par les raies 6328 Å et 1,15 μ .

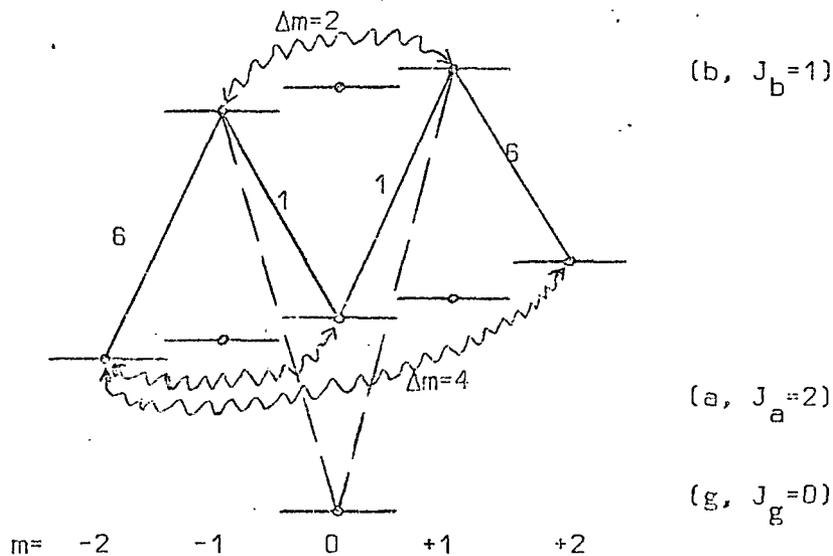
L'élargissement radiatif de l'effet Hanle du niveau $2p_4$ par la raie 6328 Å (qui peut atteindre 8 MHz avec les lasers les plus puissants) pose des problèmes identiques à ceux rencontrés dans l'étude de l'effet Hanle du niveau $3s_2$ pompé par la raie 7305 Å (cf. § II-2-a et b). DECOMPS [1], qui avait effectué sans prendre beaucoup de précautions l'extrapolation de la largeur à intensité laser nulle, avait obtenu une largeur naturelle du niveau $2p_4$ ($9,35 \pm 0,25$ MHz) qui était nettement supérieure à la valeur obtenue par DUMONT à l'aide d'un pompage laser avec une cellule externe ($8,64 \pm 0,40$ MHz [10]). Récemment, M.P. GORZA et B. DECOMPS [22] ont repris les mesures en pompage interne avec une méthode de mesure améliorée (modulation du champ magnétique) et en effectuant très soigneusement les extrapolations à intensité laser nulle (*): ils ont trouvé une nouvelle valeur de la largeur naturelle du niveau $2p_4$ en très bon accord avec la valeur de DUMONT.

L'analyse de l'élargissement radiatif doit être un des meilleurs moyens d'obtenir le taux de pompage, γ , en fonction de l'intensité laser. Ceci est dû au fait que, comme le montre l'étude théorique (et cela a été vérifié expérimentalement [22]), cet élargissement radiatif est très peu sensible à la valeur des différents temps de relaxation des niveaux et est pratiquement indépendant des conditions de pression et de décharge.

(*) La modulation du champ magnétique permet une détection synchrone de l'effet Hanle sans qu'il soit nécessaire de moduler l'intensité du laser à l'aide d'une roue dentée. Or cette modulation de l'intensité du laser à l'aide d'une roue dentée entraîne d'importantes instabilités aux faibles intensités de pompage. Au contraire la méthode de modulation du champ magnétique permet encore d'obtenir des signaux détectables pour des intensités d'irradiation de 5 à 10 fois plus faibles que dans la méthode traditionnelle.

IV.4 - Forme de raie de l'effet Hanle du niveau $3s_2$: mise en évidence du moment hexadécapolaire induit par le laser dans le niveau $2p_4$ [$^2\ ^3$]

L'alignement créé par le laser dans le niveau b ($J_b = 1$) est très faible, surtout aux fortes intensités laser, où il a tendance à s'annuler. L'alignement, et même le moment hexadécapolaire du niveau a, deviennent alors plus importants que l'alignement de b : dans l'effet Hanle de b, le couplage avec ces deux observables du niveau a ne pourra pas être négligé aux fortes intensités d'irradiation. Ces couplages peuvent être aisément mis en évidence sur le diagramme de la transition (*)



IV.4.a. Création d'un moment hexadécapolaire dans le niveau a

A partir du sous-niveau $m_a = 0$, le laser crée de la cohérence Zeeman entre les sous-niveaux $m_b = +1$ et $m_b = -1$. Cette absorption d'un photon correspond à un effet du second ordre sur le champ électrique de l'onde laser. La cohérence $\Delta m_b = 2$, qui est ainsi créée, évolue à la fréquence $2\omega_b$: c'est l'alignement transversal du niveau b qui peut être observé sur la fluorescence de ce niveau vers un niveau inférieur g. Au quatrième ordre, par émission stimulée d'un photon laser, cette cohérence peut être portée entre les sous-niveaux $m_a = +2$ et $m_a = -2$ (**)

(*) On n'a pas représenté les transitions $m_b = 0 \rightarrow m_a = \pm 1$ qui ne peuvent induire de couplages mettant en jeu l'alignement du niveau b.

(**) Ce processus est très important, étant donnée la forte probabilité de transition mise en jeu (6 pour $m_b = \pm 1 \rightarrow m_a = \pm 2$ contre 1 pour $m_b = \pm 1 \rightarrow m_a = 0$). Il entraîne un très fort raccourcissement de la durée de vie de l'alignement de b, aux fortes intensités laser. C'est pour cette raison que l'effet Hanle de b présente un élargissement radiatif très important (courbe I de la figure B-42)

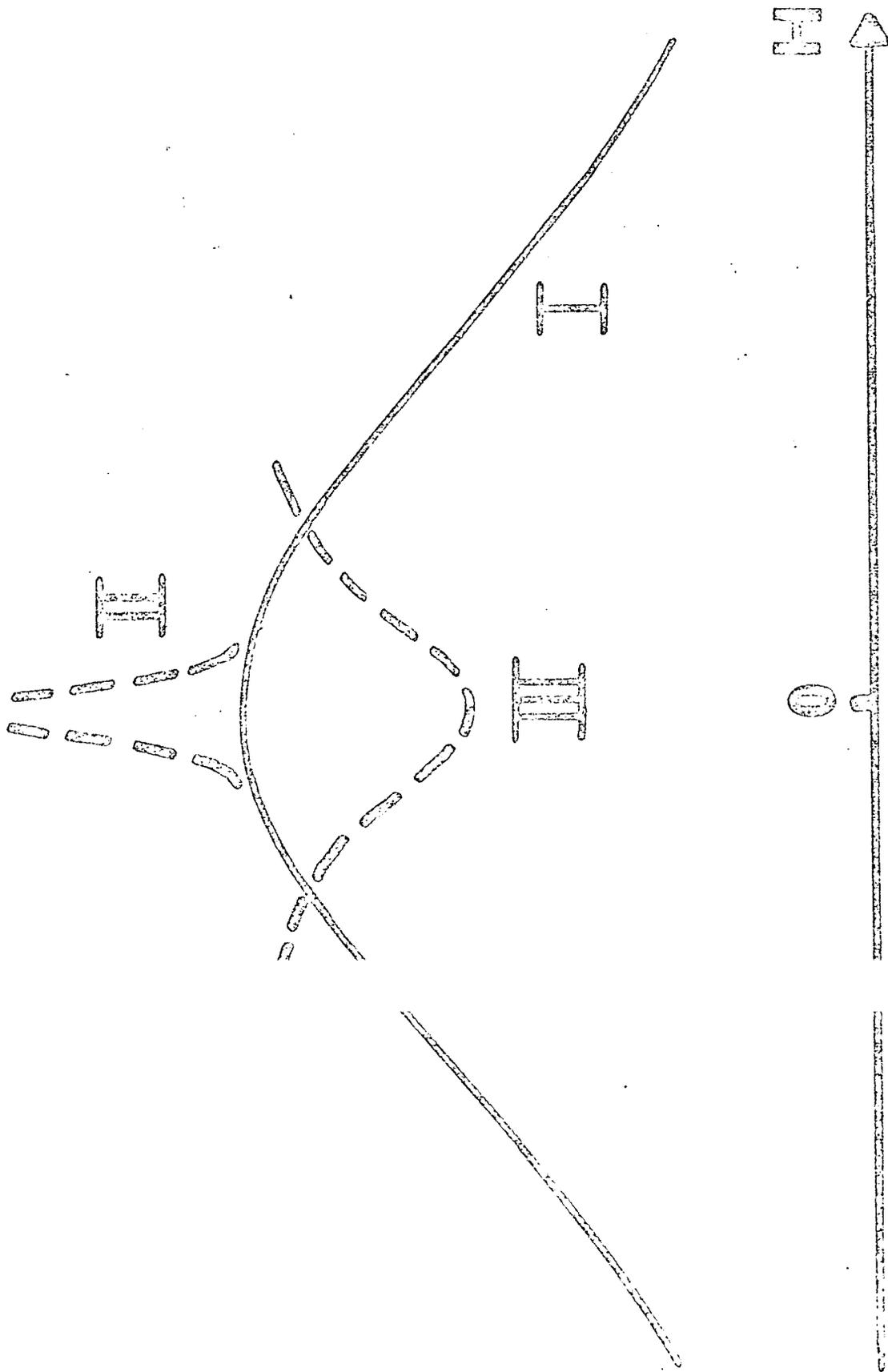


FIGURE B-42 : (I) Effet Hanle
 (II) Résonance du
 (III) Résonance du

ct de b (fortement élargi par l'intensité d'irradiation)
 couplage avec le moment hexadécapolaire de a (effet du 6e ordre)
 couplage avec l'alignement de a (effet du 4e ordre)

Puisque $\Delta m_a = 4$, cette cohérence décrit le moment hexadécapolaire transversal du niveau a (ρ_a^4), qui évolue à la fréquence $4\omega_a$. A cause du caractère dipolaire de l'émission spontanée, ce moment ne peut pas être observé directement sur la fluorescence du niveau a.

IV.4.b. Couplage du moment hexadécapolaire avec l'alignement du niveau b

Par absorption d'un photon laser, la cohérence $\Delta m_a = 4$ peut être ramenée dans les sous-niveaux $m_b = \pm 1$. Ce processus du sixième ordre permet de restituer au niveau b une partie de la cohérence Zeeman qui avait été créée au second ordre. Cette restitution est maximale en champ magnétique nul, quand les cohérences n'évoluent pas. Par suite des évolutions successives dans les niveaux b (fréquence $2\omega_b$) et a (fréquence $4\omega_a$), cette restitution sera fortement affectée par le champ magnétique. Contrairement à la cohérence du second ordre, ce processus du sixième ordre sera détruit par des champs magnétiques très faibles. Sur l'effet Hanle de b, il apparaîtra par une résonance positive (puisque'il s'agit d'une restitution de cohérence) et très étroite, centrée en champ nul (courbe II de la figure B-42). Cette résonance est d'autant plus visible que l'effet Hanle direct est fortement élargi par l'intensité laser (cf. note ^(**) de la page précédente).

IV.4.c. Couplage des alignements de a et b

A partir du sous-niveau $m_b = -1$, le laser induit au second ordre de la cohérence Zeeman entre les sous-niveaux $m_a = 0$ et $m_a = -2$ (alignement transversal de a). La cohérence $\Delta m_a = 2$ ainsi créée peut être transférée, au quatrième ordre de perturbations, dans les sous-niveaux $m_b = \pm 1$ par absorption d'un photon σ^+ . De la même façon, la cohérence induite au second ordre entre les sous-niveaux $m_a = 0$ et $m_a = 2$ est transférée dans le niveau b par absorption d'un photon σ^- .

Ce couplage entre les alignements de a et b est à l'origine d'une résonance supplémentaire sur l'effet Hanle de b (courbe III de la figure B-42), qui est négative (parce que les alignements de a et b sont de signe contraire) et plus large que la résonance hexadécapolaire (puisque'elle provient de cohérences

$\Delta m_a = 2$ au lieu de cohérences $\Delta m_a = 4$) (*).

IV.4.d. Calcul théorique de la forme de raie de l'effet Hanle de b

Les arguments qualitatifs que nous venons de présenter ont été confirmés par un calcul-machine de la forme de raie de l'effet Hanle, utilisant la théorie non-perturbative présentée dans l'article II. Les résultats obtenus sont reportés sur la figure B-43, pour diverses valeurs du taux de pompage (les temps de relaxation utilisés dans la théorie correspondent à peu près aux conditions expérimentales de la raie $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ avec 1,5 torr de néon : voir note (16) de l'article II).

A faible intensité laser, les couplages sont trop faibles pour entraîner une déviation importante de la forme de l'effet Hanle par rapport à une forme de Lorentz (figure B-43 - courbe 1). Quand l'intensité laser augmente, l'effet Hanle est fortement élargi et une structure fine apparaît au sommet de la courbe, en champ nul. D'abord, il apparaît une résonance fine due au couplage avec le moment hexadécapolaire de a (figure B-43 - courbe 2). Ensuite, pour de fortes in-

(*) L'interprétation, que nous venons de donner en termes de cohérence entre sous-niveaux Zeeman, aurait pu être présentée aussi en termes d'interférence quantique dans la diffusion de rayonnement par l'intermédiaire de plusieurs chemins (de la même façon qu'au paragraphe II-1-a). Ainsi, l'effet Hanle direct de b (courbe I de la figure 42) correspond à l'interférence entre les deux chemins

$$m_a = 0 \rightarrow m_b = 1 \rightarrow g$$
$$\text{et } m_a = 0 \rightarrow m_b = -1 \rightarrow g$$

La résonance hexadécapolaire (courbe II) correspond à l'interférence entre les chemins

$$m_a = 0 \rightarrow m_b = 1 \rightarrow m_a = 2 \rightarrow m_b = 1 \rightarrow g$$
$$\text{et } m_a = 0 \rightarrow m_b = -1 \rightarrow m_a = -2 \rightarrow m_b = -1 \rightarrow g$$

La résonance quadrupolaire (courbe III) correspond à l'interférence entre les chemins

$$m_b = -1 \rightarrow m_a = 0 \rightarrow m_b = 1 \rightarrow g$$
$$\text{et } m_b = -1 \rightarrow m_a = -2 \rightarrow m_b = -1 \rightarrow g$$

et à l'interférence entre les chemins symétriques partant de $m_b = 1$. Pour chaque paire considérée, les amplitudes des deux chemins sont simultanément importantes en champ magnétique nul, et il y a interférence constructive. En champ magnétique fort, les deux amplitudes sont maximales pour des valeurs différentes de l'énergie des photons absorbés et réémis et les effets d'interférence disparaissent. Chacune des résonances associées a une largeur reliée au nombre d'états intermédiaires (plus il y a d'états intermédiaires et plus la résonance est fine) et à la vitesse à laquelle le champ magnétique sépare ces états (plus grande est la différence des nombres quantiques magnétiques des états intermédiaires, plus faible est le champ magnétique pour lequel l'écart entre leurs énergies Zeeman est supérieur à leurs largeurs naturelles).

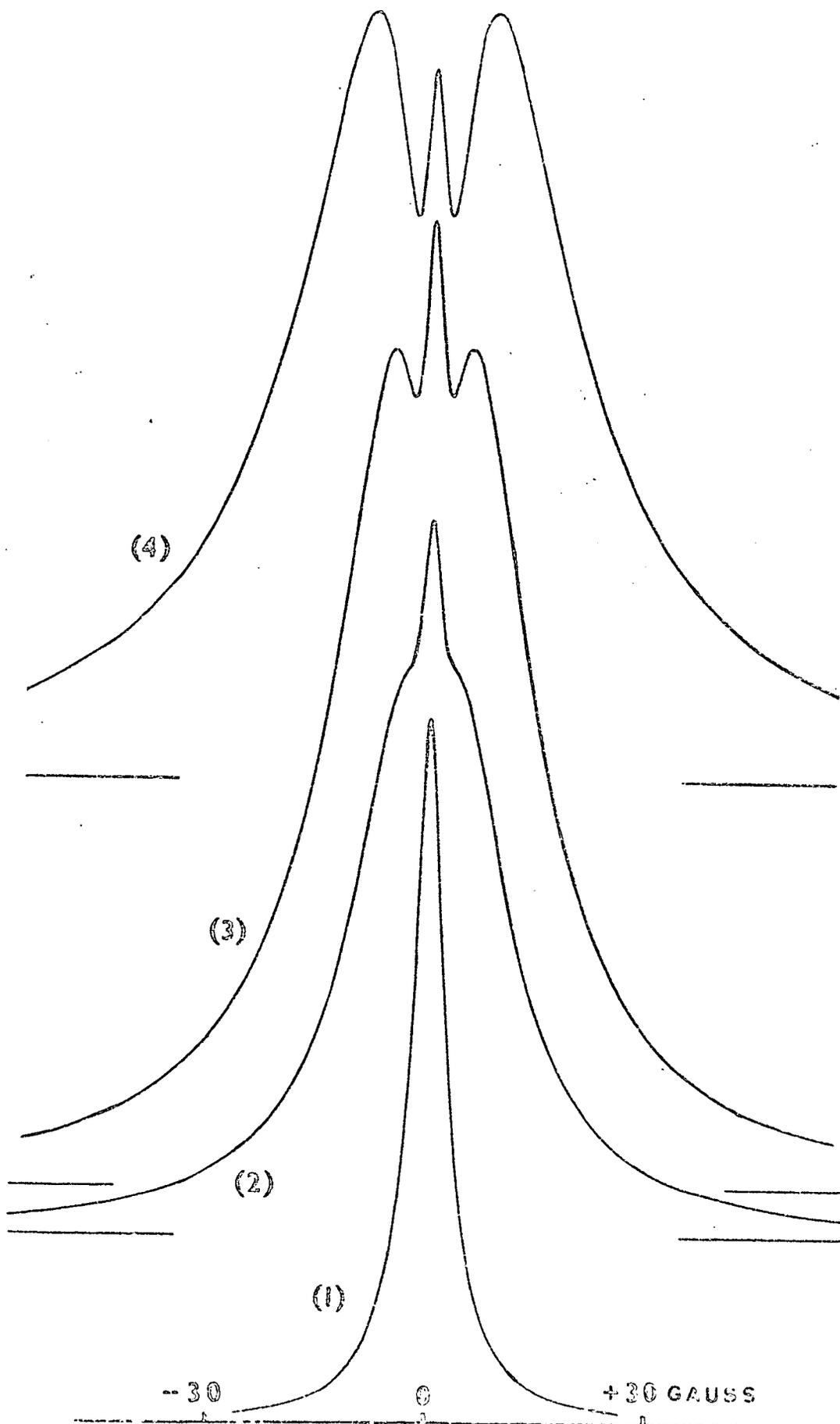


FIGURE B-43 : Calcul théorique de la forme de raie de l'effet Hanle de D (transition $3p^2 \rightarrow 1s^2$). Les courbes 1, 2, 3 et 4 correspondent respectivement à des taux de pompage égaux à 10, 50, 70 et 115 MHz. L'amplitude des courbes a été choisie de façon à rendre plus facile la comparaison avec les résultats expérimentaux de la figure B-44.

tensités, il apparaît un creux plus large induit par le couplage avec le moment quadrupolaire de a (figure B-43 - courbe 3). L'importance de ce creux augmente avec l'intensité laser (courbe 4). Il peut paraître anormal qu'un effet du sixième ordre (couplage hexadécapolaire) apparaisse avant un effet du quatrième ordre (couplage quadrupolaire). En fait, le couplage quadrupolaire existe déjà sur la courbe 2, mais il n'est pas visible parce que les effets Hanle des niveaux a et b ont sensiblement la même largeur. A forte intensité, l'effet Hanle de b est plus élargi que celui de a, et la résonance induite par le couplage avec l'alignement de a devient observable.

IV.4.e. Effet Hanle du niveau $3s_2$

Comme on peut le voir sur la figure B-44, tous les effets prédits par la théorie ont été observés sur le niveau $3s_2$ pompé optiquement par la raie $\lambda = 6328 \text{ \AA}$. Le signal d'effet Hanle a été étudié sur les raies de fluorescence $\lambda = 7305 \text{ \AA}$ et $\lambda = 5434 \text{ \AA}$. La figure B-44 montre les courbes obtenues à 7305 \AA , après intégration du signal pendant plusieurs heures dans un analyseur multicanaux. Ce signal étant très faible, le réglage des polariseurs à la détection est essentiel : en effet, à cause de la résonance de saturation observable sur la fluorescence π , une très petite quantité de polarisation π , mélangée à la polarisation σ , change complètement le signal observé. Ce n'est qu'avec des polariseurs parfaitement réglés que l'effet Hanle est identique sur les raies 7305 \AA et 5434 \AA . Cet effet Hanle montre alors de façon indubitable l'existence d'un moment hexadécapolaire induit par le laser dans le niveau $2p_4$. Puisque l'effet Hanle du niveau $3s_2$ présente, à forte intensité laser, un couplage important avec le moment hexadécapolaire son amplitude doit être sensible à la grandeur de ce moment et donc à son temps de relaxation, $1/\Gamma_a$ (4). C'est ce que nous allons voir immédiatement en étudiant le taux d'anisotropie de la fluorescence du niveau $3s_2$ (*).

(*) La comparaison des figures B-43 et B-44 montre qu'avec le laser utilisé pour les présentes expériences, on peut atteindre des taux de pompage de l'ordre de 120 à 130 MHz (ces valeurs sont confirmées par l'analyse de l'élargissement radiatif de l'effet Hanle du niveau $2p_4$ [2]). On peut comparer cette valeur avec celle obtenue pour la raie laser $\lambda = 7305 \text{ \AA}$ ($\gamma_M \sim 3,6 \text{ MHz}$ pour une densité d'énergie lumineuse de $0,2 \text{ W/mm}^2$). Le rapport théorique du carré des éléments de matrice dipolaires électriques est de l'ordre de

$$\frac{|P_{ab}(6328 \text{ \AA})|^2}{|P_{ab}(7305 \text{ \AA})|^2} \sim 6,8$$

(le rapport des probabilités de transition étant de 10,4, d'après [6]). On en déduit qu'à l'intérieur de la cavité, la densité d'énergie lumineuse à 6328 \AA est égale à :

$$0,2 \times \frac{120}{6,8} \times \frac{120}{3,6} \approx 1 \text{ W/mm}^2$$

c'est-à-dire aussi importante que celle qu'on peut obtenir avec les lasers ioniques (à l'extérieur de la cavité).

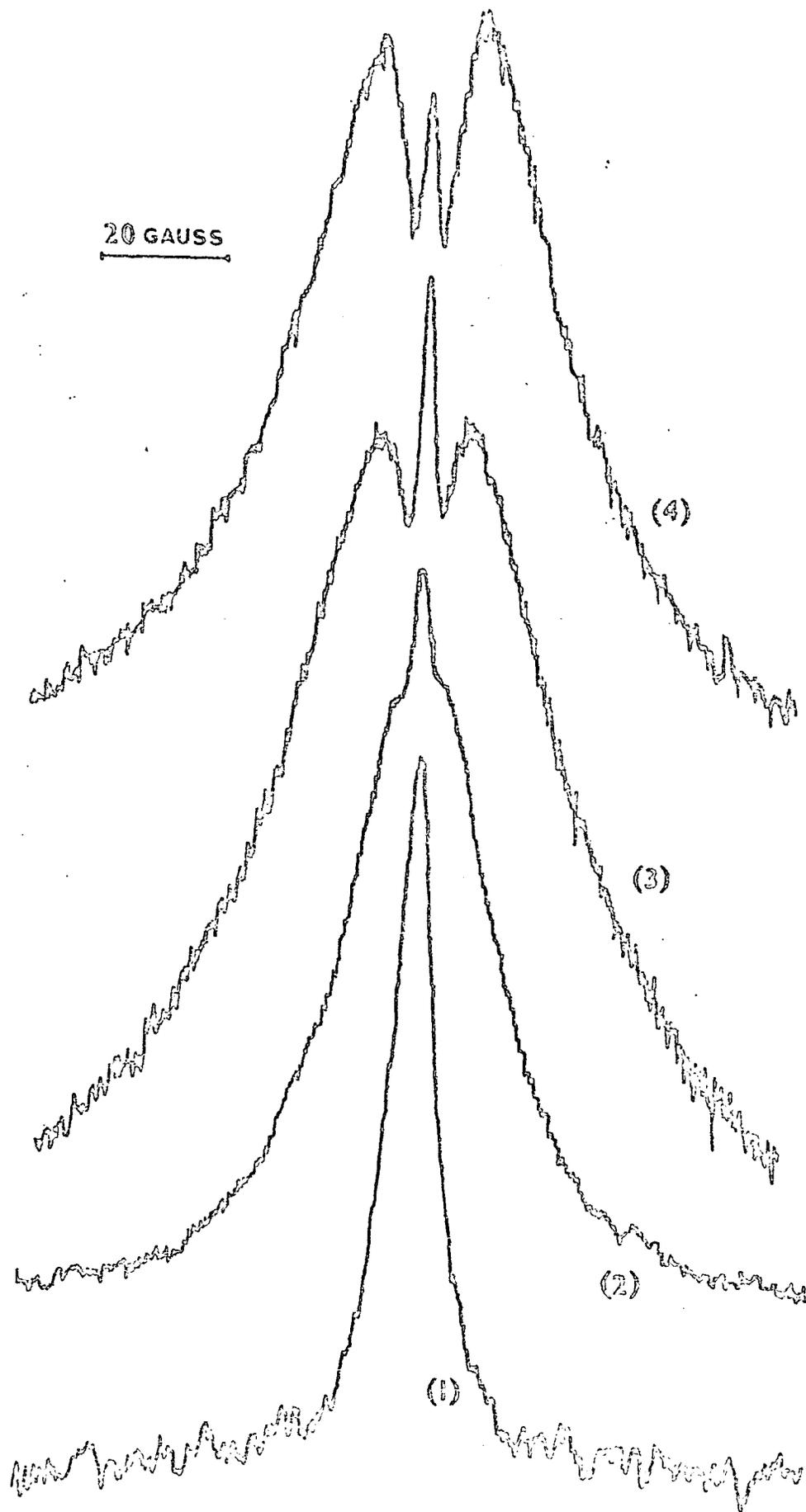


FIGURE B-44 : Effet Hanle du niveau $3p_2$ observé sur la fluorescence à 7305 \AA (irradiation laser 6328 \AA ; $p = 1,5$ torr de néon; $i_0 = 10 \text{ m}^2$). Les courbes 1, 2, 3 et 4 correspondent respectivement à des intensités laser égales à 0.2, 1, 2 et 3.75 mW .

IV.5 - Taux d'anisotropie de la fluorescence du niveau $3s_2$: possibilité de mesure du temps de relaxation hexadécapolaire du niveau $2p_4$

L'anisotropie de la fluorescence, qui est directement proportionnelle à l'amplitude de l'effet Hanle, est obtenue à l'aide des formules II-72, II-74 et II-75. Si on introduit la quantité :

$$Y_b(H) = 10 \sqrt{2} \cdot \frac{\Gamma_b(2)}{\Gamma_b(0)} \cdot \frac{b \rho_0^2(H)}{b \rho_0^0(H)} \quad (B,82)$$

on peut écrire l'anisotropie de la fluorescence $b \rightarrow g$ sous la forme :

$$R_{bg} = \frac{-3Y_b(0)}{\frac{20}{A_g} \cdot \frac{\Gamma_b(2)}{\Gamma_b(0)} - Y_b(0)} \quad (B,83)$$

où $A_g = -1, 1/2$ ou $-1/10$ si $J_g = 0, 1$ ou 2 .

$Y_b(0)$ est donné par

$$Y_b(0) = \frac{1 + \frac{8Y}{35} \left[\frac{1}{\Gamma_a(4)} - \frac{1}{\Gamma_a(2)} \right]}{1 + \frac{8Y}{35} \left[\frac{1}{\Gamma_a(4)} + \frac{21}{20} \tau_3^3 \right]} \quad (B,84)$$

(τ_3^3 est donné par (B,77)).

$Y_b(0)$, qui est au maximum égal à 1, peut être négligé dans le dénominateur de (B,83) et on obtient :

$$R_{bg} \approx - \frac{3A_g}{20} \cdot \frac{\Gamma_b(0)}{\Gamma_b(2)} \cdot Y_b(0) \quad (B,85)$$

Aux fortes intensités laser, R devient proportionnel à la différence des temps de relaxation hexadécapolaire et quadrupolaire du niveau a, $\frac{1}{\Gamma_a(4)} - \frac{1}{\Gamma_a(2)}$. Ceci peut s'interpréter directement sur la forme de l'effet Hanle de b. Comme on peut le voir sur la figure 11 de l'article II, lorsque l'intensité laser augmente, l'effet Hanle "direct" (courbe I de la figure B-43) s'élargit et son amplitude diminue. Aux très fortes intensités d'irradiation, l'effet Hanle de b se présente alors sous la forme d'une différence entre la résonance hexadécapolaire (courbe II de la figure B-43) et la résonance quadrupolaire (courbe III), dont les amplitudes sont respectivement proportionnelles aux temps de relaxation des moments hexadécapolaire et quadrupolaire du niveau a. Les variations de R aux fortes intensités de pompage devraient donc permettre de mesurer $\Gamma_a(4)$. En particulier, on a la relation suivante entre la valeur asymptotique de R et sa valeur à intensité laser évanescente :

$$\frac{R(\gamma \infty)}{R(\gamma = 0)} = \alpha \cdot \frac{\Gamma_a(2) - \Gamma_a(4)}{\Gamma_a(2)} \quad (B,86)$$

avec :

$$\alpha = \left[1 + \frac{21}{20} \tau_3^3 \Gamma_a(4) \right]^{-1} \quad (B,87)$$

($\alpha \sim 0,3$ pour la raie 6328 Å dans les conditions expérimentales usuelles).

Les variations de R_{bg} avec l'intensité laser ont été précédemment étudiées par DECOMPS sur le niveau $3s_2$ pompé par la raie 6328 Å (voir figure B-45 tirée de la réf. [1]) et reproduisent qualitativement bien les prévisions théoriques (figure 6 de l'article II). Ces mesures sont actuellement reprises [22], de concert avec une étude expérimentale de la relation $\gamma(i_\lambda)$, de façon à obtenir une détermination de $\Gamma_a(4)$ pour le niveau $2p_4$.

Pour finir, nous voudrions discuter du degré de précision que l'on peut espérer obtenir sur la mesure de $\Gamma_a(4)$. Comme on vient de le voir, cette mesure est déduite des valeurs de R à fort taux de pompage. Nous entendons par fort taux de pompage des valeurs de γ nettement supérieures au rayon de convergence, γ_2 , du développement de perturbations du degré d'anisotropie, R . D'après (B,84) et (B,85), on a :

$$\frac{1}{\gamma_2} = \frac{8}{35} \left[\frac{1}{\Gamma_a(4)} + \frac{21}{20} \tau_3^3 \right] \quad (B,88)$$

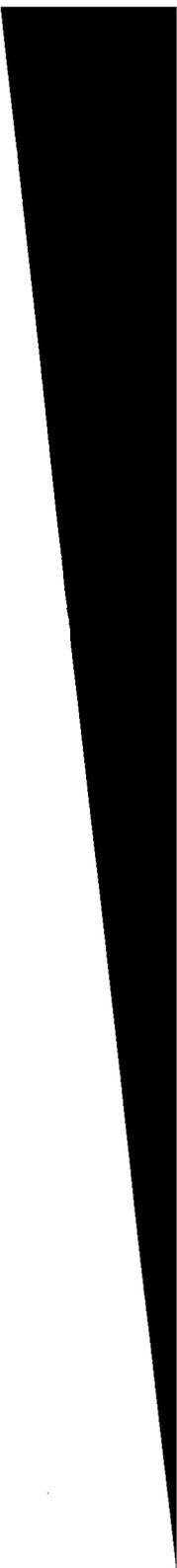
(Pour la raie 6328 Å, $\gamma_2 \sim 17$ MHz alors que γ peut atteindre 120 - 130 MHz).

Pour $\gamma \gg \gamma_2$, on a :

$$\begin{aligned} \frac{R(\gamma)}{R(0)} &\approx \frac{1 + \frac{8\gamma}{35} \left[\frac{1}{\Gamma_a(4)} - \frac{1}{\Gamma_a(2)} \right]}{\frac{\gamma}{\gamma_2}} \\ &\approx \frac{\gamma_2}{\gamma} + \alpha \frac{\Gamma_a(2) - \Gamma_a(4)}{\Gamma_a(2)} \end{aligned} \quad (B,89)$$

(Nous ne négligeons pas le premier terme, γ_2/γ , devant le second car $\Gamma_a(2)$ et $\Gamma_a(4)$ doivent avoir en général des valeurs proches, ce qui entraîne que les deux termes de (B,89) sont du même ordre de grandeur). L'incertitude sur ces diverses grandeurs sont alors liées par la relation :

$$\frac{\Delta \Gamma_a(4)}{\Gamma_a(4)} \approx \frac{\Delta \Gamma_a(2)}{\Gamma_a(2)} + \frac{\Gamma_a(2)}{\alpha \Gamma_a(4)} \left\{ \frac{\Delta R}{R(0)} + \frac{\gamma_2}{\gamma} \left[\frac{\Delta \gamma}{\gamma} + \frac{\Delta \gamma_2}{\gamma_2} \right] + \Delta \alpha \frac{\Gamma_a(2) - \Gamma_a(4)}{\Gamma_a(2)} \right\} \quad (B,90)$$



isotropie en champ nul

niveau 3S₂

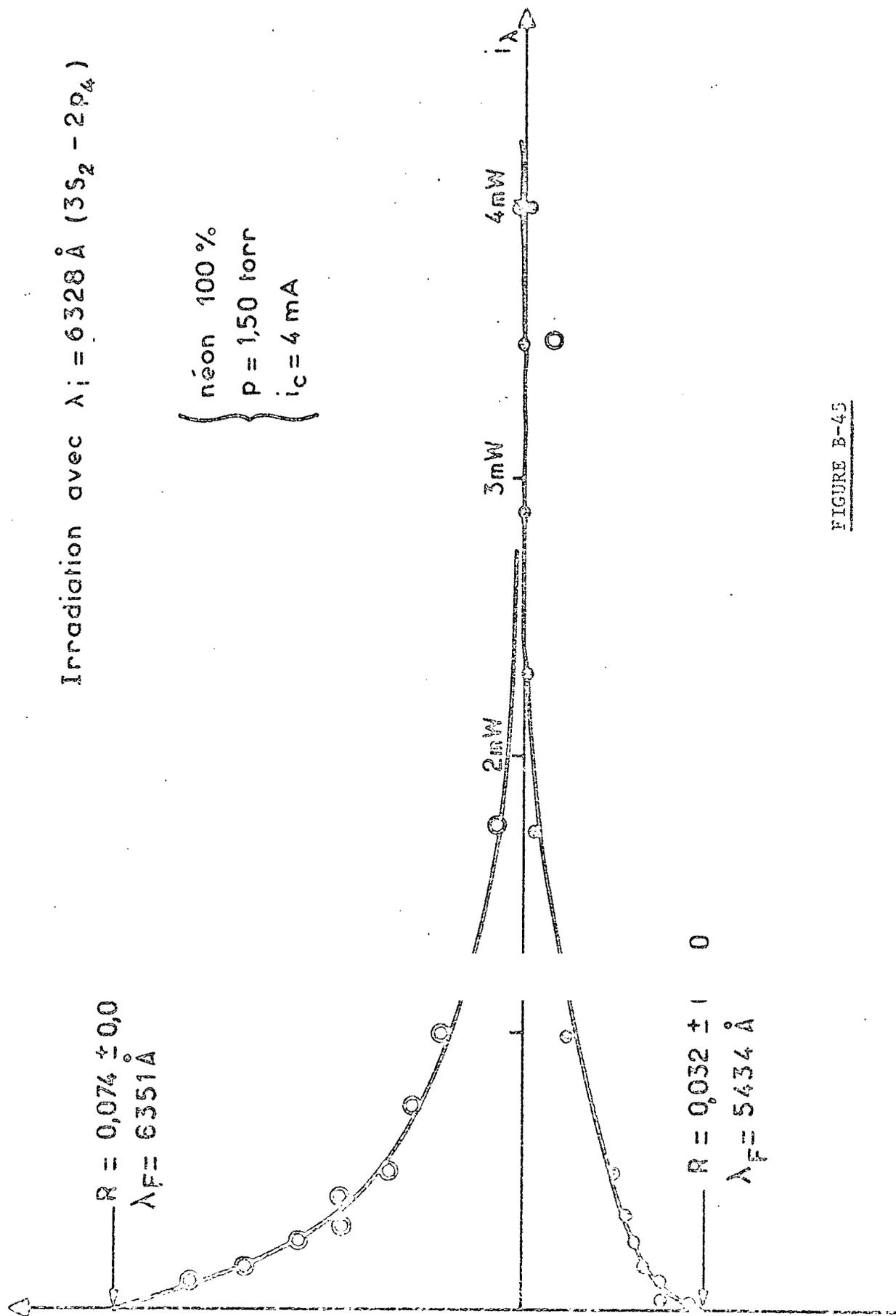


FIGURE B-45

Si on admet les hypothèses suivantes (assez vraisemblables du point de vue expérimental) :

$$(i) \quad \frac{\Delta Y}{Y}, \frac{\Delta Y_2}{Y_2} \text{ et } \frac{\Delta R}{R(0)} \text{ sont du même ordre de grandeur;}$$

$$(ii) \quad \Gamma_a(2) \text{ et } \Gamma_a(4) \text{ sont voisins,}$$

alors (B,90) se réduit à ($\gamma \gg \gamma_2$) :

$$\frac{\Delta \Gamma_a(4)}{\Gamma_a(4)} \approx \frac{\Delta \Gamma_a(2)}{\Gamma_a(2)} + \frac{1}{\alpha} \cdot \frac{\Delta R}{R(0)} \quad (B,91)$$

Dans ces conditions, la précision sur $\Gamma_a(4)$ ne dépend plus du taux de pompage, et c'est essentiellement le rapport signal sur bruit observé sur R qui permettra ou non d'obtenir des mesures significatives de $\Gamma_a(4)$ (rappelons que $\frac{1}{\alpha} \approx 3$ à 4 pour la raie 6328 Å). Remarquons enfin que dans le cas du néon, une étude de la fluorescence des niveaux $3s_2$ (pompé par la raie 6328 Å, $3s_2 - 2p_4$) et $2s_2$ (pompé par la raie 1,15 μ , $2s_2 - 2p_4$) devrait mener à deux déterminations indépendantes de $\Gamma_{2p_4}(4)$ et fournirait ainsi des informations essentielles sur le crédit à accorder à de telles mesures.

IV.6 - Résonance de saturation sur la fluorescence π

IV.6.a. Forme de raie de la résonance de saturation

Comme dans le cas d'une transition 1 - 1, la résonance de saturation observable sur la fluorescence π doit provenir à la fois des cohérences $\Delta m = 2$ entre sous-niveaux Zeeman du niveau a et des cohérences $\Delta m = 2$ du niveau b. Cependant l'alignement transversal de a est beaucoup plus grand que les autres observables transversales créées par le laser : la théorie montre alors (paragraphe V-C de l'article II) que la contribution de l'effet Hanle de a dans la résonance de saturation est prépondérante, quelle que soit la raie de fluorescence observée. Cette propriété a été observée, quelles que soient les conditions expérimentales, pour les raies laser 6328 Å et 1,15 μ (figure B-46) : dans ces deux cas, la résonance de saturation a toujours la forme de l'effet Hanle du niveau $2p_4$.

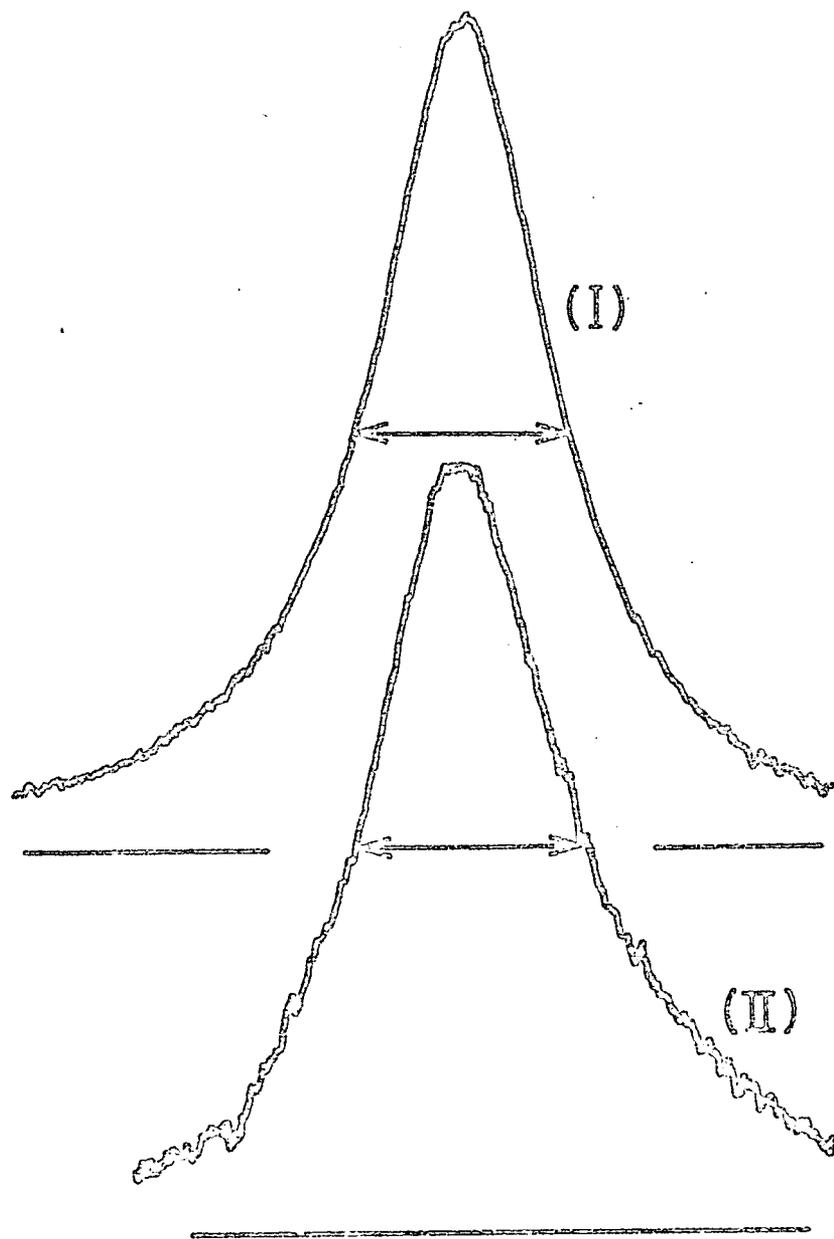
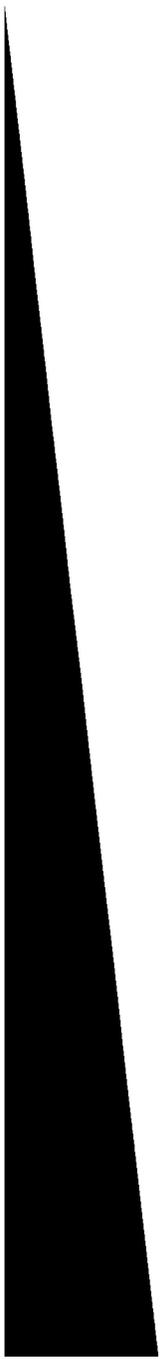
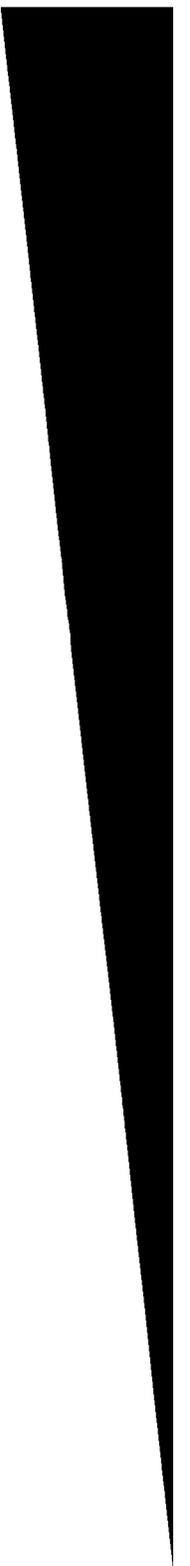


FIGURE B-46 : (I) Effet Hanle du niveau $2p_4$
 (II) Résonance de saturation sur la raie de fluorescence $\lambda = 6096 \text{ \AA}$
 (irradiation laser $\lambda = 1,15 \mu$; Ne 100%; $p = 1,80 \text{ torr}$; $i_c = 20 \text{ mA}$)



IV.6.b. Anomalie de saturation observée sur la raie de fluorescence
 $\lambda = 5944 \text{ \AA} (2p_4 \rightarrow 1s_5)$ [²⁴]

Pour les transitions laser 1 - 0 et 1 - 1, la résonance de saturation apparaît toujours comme un "effet de saturation", à savoir un trou dans la modification de fluorescence due au laser : quelle que soit la raie de fluorescence, la résonance de saturation réduit, en champ magnétique nul, cette modification de fluorescence. Ce n'est plus toujours le cas pour une transition $J = 1 - J = 2$. Lorsque le niveau $2p_4$ est pompé par la raie 6328 \AA ou la raie $1,15 \mu$, la raie de fluorescence $\lambda = 5944 \text{ \AA} (2p_4 (J=2) \rightarrow 1s_5 (J=2))$ présente un comportement anormal : la résonance de saturation va dans le sens d'une augmentation de la modification de fluorescence en champ nul. Cette anomalie a été étudiée en détail dans une lettre à "Optics Communications" [²⁴], qui est reproduite en annexe à la fin de la partie expérimentale (*).

Le phénomène a été interprété par l'étude théorique qui montre que, à très faible intensité laser, la résonance de saturation est d'abord de signe opposé à la modification de fluorescence. Mais quand l'intensité laser croît, l'amplitude de la résonance passe par un maximum faible, décroît et change de signe. Ce renversement de la saturation est caractéristique d'effets non-linéaires d'ordre élevé (ordres 6 et supérieurs à 6). Par ailleurs, comme le montre l'étude théorique et expérimentale présentée en annexe [²⁴], ce renversement est accentué lorsque la durée de vie du niveau b est beaucoup plus grande que celle du niveau a, car le phénomène étudié est essentiellement lié au temps de passage de l'atome dans le niveau b.

(*) Le paramètre δ , qui est introduit dans la théorie simplifiée de cette lettre, est relié au taux de pompage par la relation : $\gamma = 30 \delta$.

CONCLUSION

Pour donner une interprétation complète des caractéristiques du pompage optique avec un laser, nous avons été amenés à mettre au point un calcul non-perturbatif de la réponse du milieu atomique à l'irradiation laser. Ce calcul suppose essentiellement que la réponse atomique est indépendante de la vitesse, hypothèse bien justifiée dans le cas du pompage optique d'un gaz atomique par un faisceau laser multimode .

Dans un premier stade, ce calcul nous a permis d'analyser de façon quantitative des effets non-linéaires qui avaient été expérimentalement observés depuis longtemps, comme l'élargissement radiatif de l'effet Hanle ou les résonances de saturation apparaissant sur la fluorescence π . Cette étude a en particulier mis en évidence les difficultés très importantes rencontrées lors de l'extrapolation des mesures à intensité laser nulle qui est nécessaire pour obtenir des valeurs significatives, par exemple : extrapolation de la largeur de l'effet Hanle pour obtenir le temps de relaxation de l'alignement transversal. Nous avons aussi obtenu des indications détaillées sur les taux de saturation obtenus dans les lasers à gaz, taux assez importants dans certains cas pour enlever toute signification quantitative à un développement de perturbations de la réponse du milieu atomique. Accessoirement, cette étude a aussi fourni une nouvelle méthode de mesure du temps de relaxation d'un niveau de moment cinétique nul.

Dans un deuxième stade, notre calcul théorique nous a permis de prévoir des effets non-linéaires qui n'apparaîtraient qu'à des ordres très élevés dans un développement de perturbation (ordres 6 et plus) : par exemple, la création d'un moment hexadécapolaire électrique induit par l'irradiation laser dans un niveau de moment cinétique $J = 2$ et son observation sur l'effet Hanle de l'autre niveau ($J=1$) de la transition laser, ou encore, le renversement, à forte intensité laser, de la résonance de saturation observée sur une raie de fluorescence $J_a=2 \rightarrow J_f=2$, pour une transition laser $J_b=1 - J_a=2$.

Avec l'apparition des lasers de fréquence accordable (lasers à colorants) tous les problèmes liés au pompage laser et à la réponse non-linéaire d'un milieu atomique à une irradiation laser devraient prendre de plus en plus d'importance. Avec la puissance accessible dans les lasers à colorants, on peut espérer obtenir des taux de pompage comparables et même supérieurs à la largeur Doppler de la raie atomique, ainsi qu'à la largeur spectrale de la raie laser. Dans ces conditions,

notre analyse théorique devient inadéquate et de nouveaux effets non-linéaires tels que, par exemple, ceux liés au mélange des fonctions d'onde des deux niveaux de la transition laser deviendraient observables sur la fluorescence (dédoublément des raies -AUTLER - TOWNES [²⁸]- qui n'est habituellement pas observable dans le domaine optique car il disparaît dans la moyenne sur la répartition des vitesses atomiques).

Plusieurs prolongements théoriques et expérimentaux de ce travail sont possibles (dont certains sont en cours d'étude) :

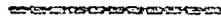
- (i) Dans le cadre de l'approximation "Broad-Line", il serait intéressant d'obtenir des solutions non-perturbatives pour des moments cinétiques élevés tels qu'on peut en rencontrer dans les molécules ("limite classique" du pompage laser).
- (ii) Dans le cas du pompage optique par un laser multimode d'atomes ou de molécules à basse pression [²⁹] ($p \lesssim 0,5$ torr), l'approximation "Broad-Line" n'est plus valable, car $\Gamma_{ab} \ll \Delta\omega$. La réponse du milieu irradié -et donc sa saturation- n'est plus homogène et dépend de la vitesse. Ceci rend beaucoup plus complexe une étude non-perturbative du pompage laser. Quelques résultats préliminaires ont déjà été obtenus, comme la dépendance en pression de l'élargissement radiatif de l'effet Hanle [³⁰].
- (iii) Le pompage optique par un laser monomode présente des similitudes avec le cas précédent. Il est particulièrement bien adapté à l'étude de la diffusion des atomes dans l'espace des vitesses, soit par les collisions, soit par la réabsorption des raies de fluorescence. La comparaison de l'effet Hanle -insensible aux changements de vitesse- et de la résonance de saturation en champ nul -qui, par contre, doit être très sensible à la diffusion de la vitesse- peut apporter des renseignements intéressants sur les processus responsables de cette diffusion. Par ailleurs, le pompage monomode devrait fournir un moyen d'analyse des collisions anisotropes et des couplages induits entre les différentes observables atomiques par ces collisions [³¹].

BIBLIOGRAPHIE DE LA PARTIE EXPERIMENTALE

- [¹] B. DECOMPS - Thèse, Université de Paris (1969)
B. DECOMPS et M. DUMONT - J. de Phys. 29, 443 (1968)
- [²] A. MESSIAH - Mécanique Quantique, Dunod éditeur, Paris (1964)
- [³] M. DUCLOY, E. GIACOBINO et B. DECOMPS - J. de Phys. 31, 533 (1970)
- [⁴] B. DECOMPS et M. DUMONT - IEEE, J. of Quant. Electron., QE4, 916 (1968)
- [⁵] C. COHEN-TANNOUDJI - Compléments de Mécanique Quantique, Laboratoire de Physique de l'E.N.S., Paris (1966)
- [⁶] M. CRANCE - Communication privée (Etude spectroscopique du néon réalisée à l'aide de la méthode du "potentiel central paramétrique". Voir S. FENEUILLE, M. KLAPISCH, E. KOENIG et S. LIBERMAN, Physica, 48, 571 (1970))
- [⁷] J.Z. KLOSE - Phys. Rev. 141, 181 (1966)
- [⁸] W.R. BENNETT Jr. et P.J. KINDMANN - Phys. Rev. 149, 38 (1966)
- [⁹] A. DENIS, J. DESEQUELLES et M. DUFAY - C.R.A.S., 266B, 1016 (1968)
- [¹⁰] M. DUMONT - Thèse, Université de Paris (1971)
- [¹¹] A.G. FOX et T. LI - Bell System Tech. J. 40, 453 (1961)
- [¹²] J.Z. KLOSE - Phys. Rev. 188, 45 (1969)
- [¹³] G. LAWRENCE et H.S. LISZT - Phys. Rev. 178, 122 (1969)
- [¹⁴] J. DATCHARY - Thèse de 3ème cycle, Université de Paris (1972)
- [¹⁵] A. OMONT - J. de Phys. 26, 576 (1965); Thèse, Université de Paris (1967)
- [¹⁶] I.M. BETEROV, Y. MATYUGIN et V.P. CHEBOTAYEV - Optics and Spectr. 28, 191 (1970)
I.M. BETEROV, Y. MATYUGIN, S.G. RAUTIAN et V.P. CHEBOTAYEV - Sov. Phys. JETP, 31, 668 (1970)
- [¹⁷] M.I. D'YAKONOV et V.I. PEREL - Sov. Phys. JETP, 31, 585 (1970)
- [¹⁸] P.W. SMITH - IEEE J. of Quant. Electron. QE8, 704 (1972)
- [¹⁹] P. BURLAMACCHI et G. TORALDO DI FRANCIA - Il Nuovo Cimento, 42, BN1, 1310 (1966)
- [²⁰] I. TOBIAS et W.M. STROUSE - Appl. Phys. Lett. 10, 342 (1967)
- [²¹] A. JAVAN, W.R. BENNETT et D.R. HERRIOTT - Phys. Rev. Lett. 6, 106 (1961)
- [²²] M.P. GORZA et B. DECOMPS - communication privée
- [²³] M. DUCLOY, M.P. GORZA et B. DECOMPS - Optics Commun. 8, 21 (1973)
- [²⁴] M.P. GORZA, B. DECOMPS et M. DUCLOY - Optics Commun. 8, 323 (1973)
- [²⁵] M. DUCLOY - Optics Commun. 3, 205 (1971)

- [²⁶] J. DATCHARY et M. DUCLOY - C.R.A.S., 274B, 337 (1972)
- [²⁷] J.Z. KLOSE - J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, 9, 881 (1969)
- [²⁸] S.M. AUTLER et C.H. TOWNES - Phys. Rev. 100, 703 (1955). Le problème de l'observation de l'effet Autler-Townes dans le domaine optique a été abordé par J. DUPONT-ROC dans sa thèse (Université de Paris, 1972)
- [²⁹] M. BROYER, J. VIGUÉ et J.C. LEHMANN - C.R.A.S. 273B, 289 (1971)
- M. BROYER, F.W. DALBY, J. VIGUÉ et J.C. LEHMANN - Canadian Journal of Physics, 51, 226 (1973)
- [³⁰] M. DUCLOY, M. BROYER et J. VIGUÉ - Communication présentée au Colloque du C.N.R.S. sur la "Spectroscopie sans largeur Doppler de Systèmes Moléculaires Simples", Mai 1973
- [³¹] M. LOMBARDI - C.R.A.S. 265, 191 (1967); J. de Phys. 30, 631 (1969)
L'analyse des collisions anisotropes vient d'être entreprise par M. DUMONT.

□ A N N E X E □



"RENVERSEMENT DE LA RESONANCE DE SATURATION"

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{Laser } J_b = 1 - J_a = 2 \\ \text{Fluorescence } J_a = 2 \rightarrow J_f = 2 \end{array} \right.$$

EFFETS NONLINEAIRES D'ORDRE ELEVE DANS UN LASER A GAZ: ANOMALIE DE SATURATION OBSERVABLE SUR UNE TRANSITION $J = 1 - J = 2$

M.P. GORZA et B. DECOMPS

*Laboratoire de Physique des Lasers, Centre Scientifique et Polytechnique de Paris-Nord
93206 Saint Denis, France*

et

M. DUCLOY

*Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure Associé au CNRS
75231 Paris Cedex 05, France*

Reçu le 15 Mai 1973

A $J_2 = 2$ atomic level optically pumped by means of a $J_b = 1 - J_a = 2$ laser transition exhibits an anomalous saturation effect observable on π fluorescence $J_a = 2 \rightarrow J_f = 2$. This effect, which consists in an increase of the fluorescence intensity in a zero magnetic field, is interpreted by a theory taking into account higher order nonlinear effects in the laser field (sixth order and higher). This theory also shows that the lifetime of the $J_b = 1$ level plays a leading role in the interpretation of this saturation effect. All these predictions are confirmed by an experimental study of the 6328 Å neon line ($3s_2 - 2p_4$).

1. Introduction

Quand un gaz atomique, excité par une décharge, est soumis à une irradiation laser polarisée linéairement et résonnante pour une transition atomique particulière, la raie laser modifie les populations des deux niveaux de cette transition et crée de la cohérence entre les sous-niveaux Zeeman. Les variations de cette cohérence Zeeman avec un champ magnétique (H) appliqué sur les atomes peuvent être observées sur la lumière de fluorescence: c'est l'effet Hanle bien connu, qui apparaît au deuxième ordre dans une théorie de perturbations en fonction du champ électrique de l'onde laser [1]. A cause du couplage induit par le laser entre populations et cohérences Zeeman, les variations de ces cohérences apparaissent, au quatrième ordre de perturbations, sur les populations des sous-niveaux Zeeman: ces populations présentent un phénomène de saturation, résonnant en champ magnétique nul, qui a la forme des effets Hanle des deux niveaux de la transition laser. Cette "résonance de saturation" est

observable sur la composante π de la fluorescence des niveaux excités [2-4] (cf. principe de l'expérience sur la fig. 1). Les termes du quatrième ordre en fonction du champ électrique ("termes de saturation") sont de signe opposé aux termes du seconde ordre ("réponse linéaire"). Comme ces termes de saturation sont plus importants en présence de cohérences Zeeman ($H = 0$) qu'en absence de cohérences (H fort), la résonance de saturation est de signe opposé à la modification de

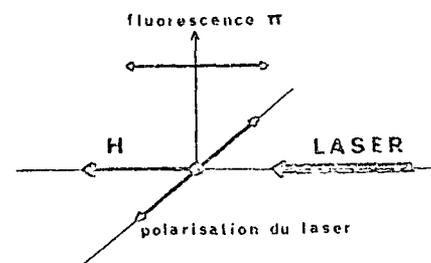


Fig. 1. Principe de l'expérience permettant l'observation des résonances de saturation.

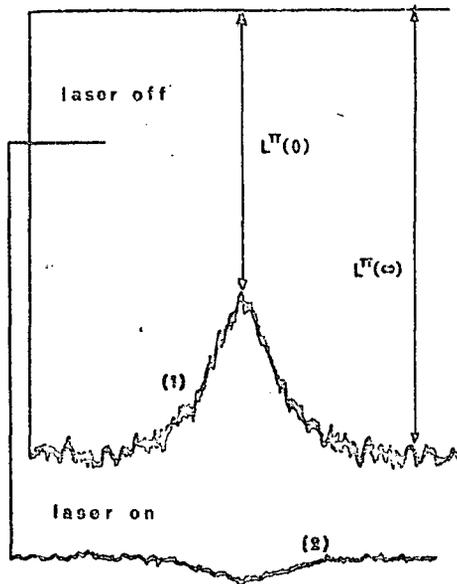


Fig. 2. Variations de la fluorescence π en fonction du champ magnétique, pour une irradiation laser $\lambda = 1.15 \mu$, résonnante pour la transition $2s_2 - 2p_4$ du néon (1) fluorescence à 6096 Å ($2p_4 - 1s_4$). (2) fluorescence à 5944 Å ($2p_4 - 1s_5$). Les raies de fluorescence présentent une résonance centrée en champ nul d'amplitude $\varphi = [L^\pi(\infty) - L^\pi(0)]/L^\pi(\infty)$. Conditions expérimentales: 0.9 torr de néon, intensité de décharge $i_c = 2$ mA.

populations, c'est à dire qu'elle diminue en champ magnétique nul la modification de fluorescence π induite par le laser. Ce dernier résultat, qui peut être obtenu à partir d'un calcul théorique poussé au quatrième ordre de perturbations [4] a été observé sur des transitions entre niveaux de moments cinétiques $J = 1 - J = 0$ [2] et $J = 1 - J = 1$ [3].

Par contre un phénomène curieux a été observé sur une transition $J = 1 - J = 2$. Quand des atomes de néon sont pompés par la raie laser $\lambda = 1.15 \mu$, résonnante pour la transition $2s_2 (J = 1) - 2p_4 (J = 2)$, la résonance de saturation du niveau $2p_4$ dépend de la raie de fluorescence considérée. Pour la raie de fluorescence $\lambda = 6096 \text{ \AA}$ (transition $2p_4 (J = 2) - 1s_4 (J = 1)$), la résonance a le signe prévu par la théorie du quatrième ordre (courbe (1) de la fig. 2). Ce n'est pas le cas de la raie $\lambda = 5944 \text{ \AA}$ (transition $2p_4 - 1s_5 (J = 2)$): la résonance de saturation augmente la modification de fluorescence en champ nul (courbe (2) de la fig. 2). Comme le quatrième ordre de perturbations prévoit une saturation opposée [4], nous avons cherché à interpréter ce

phénomène étonnant d'une saturation positive par des effets nonlinéaires d'ordre élevé (sixième ordre et plus dans un développement de perturbations).

2. Théorie simplifiée du pompage d'une transition $J_b = 1 - J_a = 2$

Il est possible de montrer [5] que, dans le pompage optique d'atomes par un laser comportant un nombre élevé de modes de fréquences proches, la réponse atomique est indépendante de la vitesse de l'atome et peut être décrite à l'aide d'un seul paramètre proportionnel à l'intensité du laser: ce paramètre représente la probabilité par unité de temps que le laser induise des transitions entre les deux niveaux considérés. La matrice densité du système atomique est alors régie par des équations d'évolution qui sont entièrement résolubles pour une intensité quelconque du laser.

Nous allons présenter ici une version simplifiée de cette théorie appliquée au pompage d'un gaz atomique par une raie laser, de polarisation linéaire σ , résonnante pour la transition $b (J_b = 1) - a (J_a = 2)$. On supposera qu'il n'existe qu'un temps de relaxation, γ_a^{-1} , par niveaux et que seul le niveau supérieur b est peuplé par la décharge (taux d'excitation par sous-niveaux: λ). Nous nous intéresserons uniquement à la fluorescence π émise par le niveau a vers un niveau $c (J_c = 2$ voir fig. 3a) et plus particulièrement à la hauteur de la résonance de saturation:

$$\varphi = [L^\pi(\infty) - L^\pi(0)]/L^\pi(\infty). \tag{1}$$

Cette hauteur φ est définie relativement aux variations de fluorescence induites par le laser en champ magné-

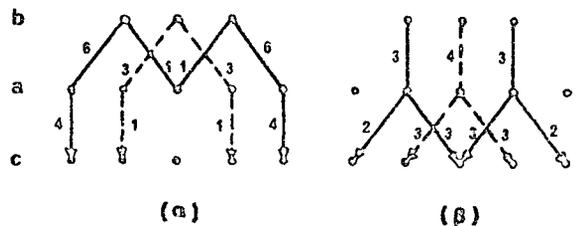


Fig. 3. Diagramme de la transition laser (b - a) et de la fluorescence (a - c); (a) laser σ et fluorescence π , (b) laser π et fluorescence σ . Les nombres portés sur la figure donnent les probabilités relatives des transitions σ^+ , σ^- et π .

tique fort, $L^\pi(\infty)$. $L^\pi(0)$ représente les variations en champ nul (voir fig. 2). Remarquons que φ est positif pour une résonance de saturation négative (diminution de la modification de fluorescence en champ nul).

2.1. Calcul de $L^\pi(\infty)$

En champ magnétique fort, il n'existe pas de cohérence Zeeman et l'effet d'une raie de polarisation linéaire, $\sigma = (\sigma^+ + \sigma^-)/2^{1/2}$, est équivalent à l'effet simultané de deux raies de polarisations incohérentes, σ^+ et σ^- , et d'intensité moitié. Si on appelle 2δ la probabilité de transitions induites par le laser, δ représente la probabilité de transitions pour chacune des composantes σ^+ et σ^- . En utilisant les probabilités de transition relatives, telles qu'elles sont données sur la fig. 3a, on obtient finalement les équations d'évolution suivantes pour les populations (N_α^m est la population du sous-niveau m du niveau α):

$$\dot{N}_b^0 = \lambda - \gamma_b N_b^0 + 3\delta(N_a^1 - N_b^0) + 3\delta(N_a^{-1} - N_b^0), \quad (2\alpha)$$

$$\dot{N}_a^1 = -\gamma_a N_a^1 - 3\delta(N_a^1 - N_b^0); \quad (2\beta)$$

et

$$\dot{N}_b^1 = \lambda - \gamma_b N_b^1 + \delta(N_a^0 - N_b^1) + 6\delta(N_a^2 - N_b^1), \quad (3\alpha)$$

$$\dot{N}_a^2 = -\gamma_a N_a^2 - 6\delta(N_a^2 - N_b^1), \quad (3\beta)$$

$$\dot{N}_a^0 = -\gamma_a N_a^0 - \delta(N_a^0 - N_b^1) - \delta(N_a^0 - N_b^{-1}). \quad (3\gamma)$$

Utilisant la relation $N_\alpha^m = N_\alpha^{-m}$, on obtient aisément les solutions en régime stationnaire ($\dot{N} = 0$), des éqs. (2)

$$N_a^1 = \frac{3\lambda\delta}{\gamma_a\gamma_b + 3\delta(\gamma_b + 2\gamma_a)} \quad (4)$$

et des éqs. (3)

$$N_a^2 = \frac{6\lambda\delta(\gamma_a + 2\delta)}{\gamma_a^2\gamma_b + (8\gamma_b + 7\gamma_a)\gamma_a\delta + 6\delta^2(2\gamma_b + 3\gamma_a)} \quad (5)$$

La lumière de fluorescence est alors proportionnelle à:

$$L^\pi(\infty) = 2[N_a^1 + 4N_a^2]. \quad (6)$$

2.2. Calcul de $L^\pi(0)$

En champ magnétique nul, il est plus simple de prendre comme axe de quantification la polarisation du laser: le laser est alors de polarisation π et la fluorescence de polarisation σ (fig. 3b). Pour les sous-niveaux $m = 0$, les équations d'évolution sont

$$\dot{n}_b^0 = \lambda - \gamma_b n_b^0 + 8\delta(n_a^0 - n_b^0), \quad (7\alpha)$$

$$\dot{n}_a^0 = -\gamma_a n_a^0 - 8\delta(n_a^0 - n_b^0). \quad (7\beta)$$

(Rappelons que 2δ est la probabilité absolue de transitions induites par le laser; le facteur 4 provient de la probabilité relative de la transition $m_a = 0 - m_b = 0$, voir fig. 3b). La solution stationnaire est évidente

$$n_a^0 = \frac{8\lambda\delta}{\gamma_a\gamma_b + 8\delta(\gamma_a + \gamma_b)}. \quad (8)$$

Pour n_a^1 , il suffit de remplacer 8δ par 6δ . La lumière de fluorescence est donnée par

$$L^\pi(0) = 3n_a^0 + 5n_a^1. \quad (9)$$

2.3. Variations de φ avec l'intensité laser

φ peut être obtenu à partir des relations (1), (6) et (9). Les variations de φ en fonction de δ/γ_a , pour diverses valeurs du rapport γ_b/γ_a ont été représentées sur la fig. 4. La pente à l'origine de ces courbes, $11\delta/9\gamma_a$, donne la valeur de φ obtenu à l'aide de la théorie des perturbations au quatrième ordre en fonction du champ électrique. La limite asymptotique de φ est positive ou négative suivant que γ_b/γ_a est supérieur ou inférieur à 1.35. Il y a donc deux comportements possibles pour φ .

a) $\gamma_b/\gamma_a > 1.35$. La saturation a toujours le signe donné par la théorie du quatrième ordre (diminution de la fluorescence en champ nul).

b) $\gamma_b/\gamma_a < 1.35$. φ , d'abord positif, passe par un maximum faible, décroît et change de signe. A forte intensité laser, la résonance de saturation augmente la modification de fluorescence en champ nul. Ce comportement anormal de φ est accentué lorsque γ_b/γ_a diminue.

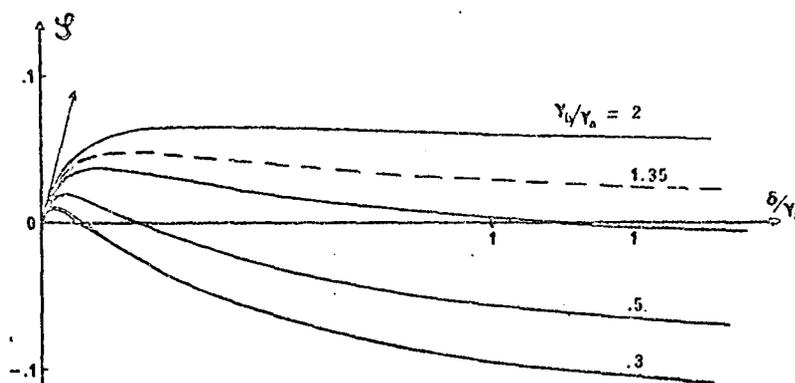


Fig. 4. Variations de la hauteur de saturation en fonction du taux de pompage pour diverses valeurs du rapport des durées de vie de a et b. 1. Si $\gamma_b/\gamma_a > 1.35$, la saturation a toujours le signe donné par le quatrième ordre de perturbations. 2. Si $\gamma_b/\gamma_a < 1.35$, la saturation change de signe à forte intensité laser.

Ceci peut être interprété qualitativement sur la fig. 3a, si l'on remarque que l'intensité de la fluorescence est surtout sensible à la population des sous-niveaux $m_a = \pm 2$ de a. Comment apparaît la résonance de saturation sur la population du sous-niveau $m_a = 2$? A partir du sous-niveau $m_b = 1$, l'émission stimulée d'un photon laser crée de la cohérence entre les sous-niveaux $m_a = 0$ et $m_a = 2$. Comme nous l'avons vu dans l'introduction, au quatrième ordre de perturbation (c.a.d. après un nouveau processus d'interaction qui cette fois, fait intervenir l'absorption d'un photon), cette cohérence est responsable d'une résonance de saturation sur les sous-niveaux $m_b = 1$, $m_a = 0$ et $m_a = 2$. Cette résonance de saturation est opposée aux modifications de populations des sous-niveaux. Au sixième ordre, le laser ramène une partie de la population du sous-niveau $m_b = 1$ dans le sous-niveau $m_a = 2$. Comme les modifications de population de ces deux sous-niveaux sont de signe opposé, la résonance de saturation de $m_b = 1$ viendra se retrancher à celle de $m_a = 2$ et aura tendance à augmenter la modification de populations. Ce dernier effet est important car la probabilité de transition $m_b = 1 \rightarrow m_a = 2$ est 6 fois plus grande que celle de $m_b = 1 \rightarrow m_a = 0$. Par ailleurs, ce phénomène sera accentué 1) à forte intensité laser (plus grande probabilité de transitions laser, qui rend ce retour de populations plus important). 2) Quand la durée de vie de b sera plus longue que celle de a (ce qui accroîtra l'importance relative de la population du sous-niveau $m_b = 1$).

Ceci justifie le comportement de φ , tel qu'il est montré sur la fig. 4. Par contre, pour une raie de

fluorescence $J_a = 2 \rightarrow J_c = 1$, qui n'est pas sensible à la population du sous-niveau $m_a = 2$, φ reste toujours positif, comme le montre effectivement la théorie précédente appliquée à cette raie de fluorescence*. Ce comportement correspond bien aux observations expérimentales sur la raie $\lambda = 6096 \text{ \AA}$ (courbe (1) de la fig. 2). Signalons enfin que les résultats précédents ont été confirmés par un calcul théorique plus sophistiqué qui tenait compte des collisions dépolarisantes, de la diffusion multiple des raies de fluorescence et du transfert par émission spontanée.

3. Vérifications expérimentales sur la raie $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ du neon

Nous avons cherché à vérifier les prévisions de la théorie sur la raie de fluorescence $\lambda = 5944 \text{ \AA}$, quand le niveau $2p_4$ du néon est pompé par la raie laser $\lambda = 6328 \text{ \AA}$, résonnante pour la transition $3s_2 (J = 1) - 2p_4 (J = 2)$. Le montage expérimental a été présenté en détail dans des publications antérieures [1, 2]. Les atomes étudiés sont contenus dans une cellule placée

* Cela provient de ce que l'effet précédemment analysé de "retour de la saturation", au même ordre de perturbations, est faible pour le sous-niveau $m_a = 0$ (très faible probabilité de transition $m_b = 1 \rightarrow m_a = 0$). Par ailleurs, pour le sous-niveau $m_a = 1$, le schéma des couplages $m_b = 0 \rightarrow m_a = \pm 1$ est équivalent à celui d'une transition $J = 1 - J = 0$ pour laquelle la résonance de saturation est toujours opposée à la modification de populations.

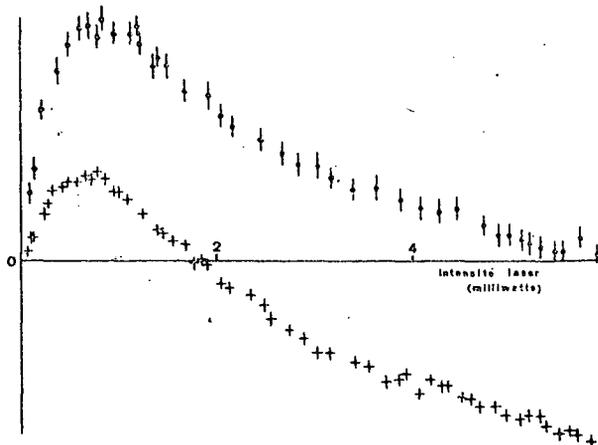


Fig. 5. Amplitude de la modulation de la fluorescence π à la fréquence 2ω en fonction de l'intensité laser (laser 6328 Å, fluorescence 5944 Å). Le champ magnétique est modulé à la fréquence $\omega = 290$ Hz autour de la valeur zéro. Les conditions expérimentales sont les suivantes (ϕ) traces de néon dans l'hélium (de l'ordre de 5°/∞); $p = 1.5$ torrs, $i_c = 15$ mA; (+) mélange 5% Ne-95% He, $p = 2.6$ torrs, $i_c = 10$ mA.

à l'intérieur de la cavité d'un laser hélium-néon. La fluorescence de la cellule est observée perpendiculairement à l'axe du laser, suivant le schéma de principe donné sur la fig. 1. Le signal de saturation étant faible (de l'ordre de 1% de la modification de la fluorescence due au laser), nous avons modulé le champ magnétique à la fréquence $\omega = 290$ Hz et détecté la modulation de la fluorescence à la fréquence 2ω . Lorsque l'amplitude de modulation est petite devant la largeur de la résonance de saturation, le signal obtenu reproduit, en fonction du champ statique, la dérivée seconde de cette résonance. Le calcul théorique complet [5], ainsi que les observations expérimentales montrent que cette résonance a une forme lorentzienne et que sa largeur, Γ , est celle de l'effet Hanle du $2p_4$. Par suite, l'amplitude en champ magnétique nul de la modulation à 2ω est proportionnelle à

$$[L_\pi(\infty) - L_\pi(0)] \Gamma^{-2} = \varphi L_\pi(\infty) \Gamma^{-2}.$$

Les variations de cette amplitude avec l'intensité laser ont été portées sur la fig. 5.

1. Les points (ϕ) correspondent à un gaz d'hélium (pression 1.5 torrs) renfermant des traces de néon (de l'ordre de 5°/∞ de néon). L'amplitude de la modulation présente un maximum à faible intensité, mais

conserve le même signe, quelle que soit l'intensité du laser: φ est toujours positif. Dans les conditions de l'expérience, les taux de relaxation sont voisins des largeurs naturelles des niveaux: 7.5 MHz pour le $3s_2$ et 9 MHz pour le $2p_4$ [1]. γ_b et γ_a sont donc du même ordre de grandeur.

2. Par contre, les croix (+) correspondent à 2.6 torrs d'un mélange 5% Ne-95% He. Dans ce cas, la raie de résonance $\lambda = 600$ Å ($3s_2 - 1p_0$) est fortement réabsorbée dans le gaz. L'emprisonnement de la raie de résonance allonge considérablement la durée de vie du $3s_2$ (par un facteur de l'ordre de 2) [1]: γ_b devient beaucoup plus petit que γ_a , et on observe un renversement de la saturation à forte intensité laser. La courbe expérimentale reproduit qualitativement bien les prévisions théoriques de la fig. 4.†‡

4. Conclusion

Nous avons mis en évidence expérimentalement un comportement anormal de la saturation de la fluorescence $J_a = 2 \rightarrow J_c = 2$ en présence d'une irradiation laser résonnante pour une transition $J_b = 1 \rightarrow J_a = 2$. L'interprétation théorique de ce phénomène montre qu'il est caractéristique d'effets non-linéaires d'ordre élevé (ordres 6 et supérieurs à 6 dans un développement de perturbations en fonction de champ électrique de laser). Nous avons pu montrer aussi que ce comportement anormal est essentiellement lié au temps de passage de l'atome dans le niveau b ($J_b = 1$) et qu'il est accentué lorsque la durée de vie du niveau b est beaucoup plus longue que celle du niveau a. Signalons

† Pour les courbes de la fig. 2 (saturation du niveau $2p_4$ dans le cas d'une irradiation laser résonnante pour la transition $2s_2 - 2p_4$), les conditions expérimentales (0,9 torr de néon) sont telles que la raie de résonance $\lambda = 627$ Å (transition $2s_2 - 1p_0$) est complètement réabsorbée dans la cellule: la durée du niveau $2s_2$ est alors beaucoup plus longue que celle du niveau $2p_4$.

‡ Une vérification quantitative des prévisions théoriques supposerait la détermination du taux de pompage, δ , en fonction de l'intensité du laser (la relation n'est pas linéaire à cause des variations, avec l'intensité, de la répartition spatiale des modes). De plus, il faudrait tenir compte dans la théorie de temps de relaxation différents pour la population et l'alignement. En effet, pour une pression de 2.6 torrs d'un mélange 5% Ne-95% He, les taux de relaxation sont de 3.5 MHz pour la population du $3s_2$, de 9 MHz pour l'alignement du $3s_2$, de 10 MHz pour la population du $2p_4$ et de 23 MHz pour l'alignement du $2p_4$ [1].

qu'un autre effet non-linéaire d'ordre élevé a été observé sur la raie $\lambda = 6328 \text{ \AA}$ du néon [6]. Ces différents effets montrent l'importance des théories non-perturbatives du pompage optique d'atomes par un laser.

Références

- [1] B. Decomps et M. Dumont, J. Physique 29 (1968) 181 et 443, IEEE J. Quantum Electron. QE4 (1968) 916.
- [2] M. Ducloy, Opt. Commun. 3 (1971) 205.
- [3] J. Datchary, Thèse de Troisième cycle, Paris, 1972; J. Datchary et M. Ducloy, à paraître.
- [4] M. Dumont, J. Physique 33 (1972) 971.
- [5] M. Ducloy, IEEE J. Quantum Electron. QE8 (1972) 560. Le calcul théorique a été soumis pour publication in "The Physical Review".
- [6] M. Ducloy, M.P. Gorza et B. Decomps, Optics Commun., à paraître.