



**HAL**  
open science

# Etude des niveaux excités du néon par spectroscopie laser sans effet Doppler

Elisabeth Giacobino

► **To cite this version:**

Elisabeth Giacobino. Etude des niveaux excités du néon par spectroscopie laser sans effet Doppler. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1976. Français. NNT: . tel-00011824

**HAL Id: tel-00011824**

**<https://theses.hal.science/tel-00011824>**

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.

LABORATOIRE DE PHYSIQUE  
DE L'ÉCOLE NORMALE  
SUPÉRIEURE



THESE DE DOCTORAT D'ETAT ES SCIENCES PHYSIQUES

présentée

A L'UNIVERSITE Pierre et Marie CURIE

PARIS VI

par

Elisabeth GIACOBINO-FOURNIER

pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences

Sujet de la thèse : ETUDE DE NIVEAUX EXCITES DU NEON PAR SPECTROSCOPIE LASER SANS EFFET DOPPLER.

Soutenue le 15 Avril 1976

Devant le Jury composé de :

MM.

J. BROSEL

Président

J. BROCHARD

B. CAGNAC

B. DECOMPS

M. DUMONT

P. JACQUINOT

P. TOSCHEK

Examineurs

THESE DE DOCTORAT D'ETAT ES SCIENCES PHYSIQUES

présentée

A L'UNIVERSITE Pierre et Marie CURIE

PARIS VI

par Elisabeth GIACOBINO-FOURNIER

pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences

Sujet de la thèse : ETUDE DE NIVEAUX EXCITES DU NEON PAR SPECTROSCOPIE LASER  
SANS EFFET DOPPLER.

Soutenu le 15 Avril 1976

Devant le Jury composé de :

MM.	J. BROSEL	Président
	J. BROCHARD	} Examineurs
	B. CAGNAC	
	B. DECOMPS	
	M. DUMONT	
	P. JACQUINOT	
	P. TOSCHEK	

Ce travail a été effectué au laboratoire de l'Ecole Normale Supérieure au cours des années 1970-1975. Je remercie vivement Messieurs Les Professeurs KASTLER et BROSSEL de m'avoir accueillie dans le groupe de Spectroscopie Hertzienne, où j'ai trouvé des conditions de travail exceptionnelles. Je tiens à exprimer toute ma reconnaissance à Monsieur J. BROSSEL qui a constamment suivi la marche de mes recherches. Cette étude n'aurait pu être menée à bien sans ses idées et ses encouragements.

B. DECOMPS et M. DUMONT ont été les premiers dans le groupe à étudier et utiliser le pompage optique laser, et ce travail a bénéficié des méthodes expérimentales et théoriques qu'ils avaient mises au point. En particulier le montage expérimental construit pour l'étude des croisements de niveaux doit beaucoup à l'aide et aux conseils qu'ils m'ont apportés, malgré les lourdes responsabilités qu'ils ont été appelés à assumer à Saint Denis. Je leur suis également reconnaissante pour leur lecture critique du manuscrit, qui m'a permis d'en améliorer la présentation.

J'ai eu la chance de travailler avec M. DUCLOY, d'abord en collaboration avec lui, puis sur un sujet voisin du sien. Au cours des nombreuses discussions que nous avons eues, ses idées, sa clarté d'esprit, sa compréhension des phénomènes physiques m'ont été d'un grand secours. Je suis heureuse de le remercier aussi pour son aide sur le plan expérimental et pour les suggestions qu'il m'a proposées sur la partie théorique de ce mémoire.

J'exprime aussi toute ma gratitude à F. LALOE, qui malgré ses nombreuses charges a accepté de s'intéresser très régulièrement à ce travail, et ne m'a pas ménagé son temps ni ses conseils. Les discussions que nous avons eues, en particulier à propos du manuscrit de ce mémoire, m'ont permis d'approfondir de nombreux sujets et ont été extrêmement fructueuses pour moi.

Les expériences d'absorption à deux photons ont été réalisées à la "Halle aux Vins" en collaboration avec G. GRYNBERG et F. BIRABEN, sous la direction de Monsieur le Professeur B. CAGNAC. Je voudrais leur dire le plaisir que j'ai eu à travailler avec eux et les remercier de m'avoir accueillie dans leur groupe et de m'avoir fait profiter de leur grande compétence, tant sur le plan théorique qu'expérimental.

Comme on le verra, j'ai beaucoup utilisé dans ce travail les résultats de l'étude théorique de S. LIBERMAN, du laboratoire Aimé Cotton. Les conversations que j'ai eues avec lui m'ont aidées à la compréhension des méthodes de

*calcul spectroscopique et je l'en remercie.*

*Il règne dans le groupe de recherche un véritable esprit d'équipe et les conseils et avis que j'ai reçus de tous m'ont été très utiles. Mes remerciements vont également à tous les membres de l'équipe technique qui ont toujours manifesté, pour résoudre les problèmes une promptitude et un soin auxquels je rends hommage.*

*Madame C. EMO s'est chargé de la frappe du manuscrit ; je la remercie vivement pour le soin et la gentillesse qu'elle y a mis. Madame AUDOIN a assuré le tirage de ce mémoire dans des conditions difficiles, et je lui en suis très reconnaissante.*

## Table des Matières

	Pages
Introduction	1
<u>Chapitre I Structure Zeeman et hyperfine de l'atome de Néon</u>	<u>5</u>
I-1 <u>Rappel - Les niveaux de structure fine du Néon.</u>	6
I-2 <u>La structure hyperfine</u>	8
I-2a L'hamiltonien hyperfin	8
I-2b Calcul des énergies hyperfines au premier ordre	11
I-2c Calcul au second ordre	13
I-3 <u>La structure Zeeman</u>	16
I-3a Effet Zeeman de structure hyperfine dans un niveau de structure fine isolé	17
I-3b Effet du couplage Zeeman et hyperfin entre niveaux de structure fine différents.	21
<u>Chapitre II Les courbes de croisements de niveaux en pompage optique laser</u>	<u>29</u>
II-1 <u>Rappel des propriétés générales des résonances de croisement</u>	30
II-1a Principe d'une expérience de croisements de niveaux	30
II-1b Choix des polarisations d'excitation et de détection	32
II-1c Largeur des résonances de croisement lorsque les taux de relaxation des diverses observables tensorielles sont différents	37
II-2 <u>Excitation des croisements de niveaux par pompage optique laser</u>	39
II-2a Hypothèses concernant l'intensité et la largeur spectrale de la lumière de pompage	39
II-2b Forme des croisements : position du problème	42
II-2c Calcul au premier ordre en $\gamma$	46
II-2d Elargissement de la résonance de croisement (terme du 1er ordre en $\gamma$ )	47
II-2e Forme des courbes de croisement dans le cas général	53
II-3 <u>Effets liés à la variation avec le champ magnétique des fonctions d'onde et à la courbure des sous-niveaux hyperfins.</u>	56
II-3a Effets liés à la variation des fonctions d'onde	56
II-3b Effet de la courbure des sous-niveaux	58
<u>Chapitre III Etude du signal de résonance magnétique en pompage optique laser</u>	<u>59</u>
III-1 <u>Position du problème</u>	60
III-2 <u>Effet de la composante anti-résonnante sur la forme de raie de résonance magnétique en alignement</u>	62
III-2a Pompage optique longitudinal	64
III-2b Pompage optique transversal $\sigma$	65
III-3 <u>Résonance magnétique en présence d'un pompage optique laser fort</u>	66
III-a Transition $J=0 \leftrightarrow J=1$	68
III-b Transition $J=1 \leftrightarrow J=1$	79
<u>Chapitre IV Les transitions à deux photons sans effet Doppler</u>	<u>87</u>
IV-1 <u>Calcul de la matrice densité après absorption de deux photons</u>	88
IV-1a Equations d'évolution	90
IV-1b Interprétation du problème à l'aide de diagrammes	92
IV-1c Résultats du calcul	95
IV-1d Cas de plusieurs niveaux-relais	98

IV-2	<u>Cas où la transition étudiée a une structure hyperfine</u>	99
IV-2a	Composantes de la matrice densité dans les sous-niveaux hyperfins	99
IV-2b	Intensité de la fluorescence observée	100
Chapitre V	<u>Les expériences de croisements de niveaux et de double résonance et les résultats spectroscopiques</u>	107
V-1	<u>Le montage expérimental</u>	107
V-1a	La cellule	110
V-1b	Les lasers	110
V-1c	Les champs magnétiques	115
V-1d	La détection	116
V-2	<u>Les expériences de croisements de niveaux hyperfins</u>	118
V-2a	Etude des déplacements et déformations de courbes de croisements de niveaux	123
V-2b	Dépouillement des enregistrements expérimentaux	127
V-2c	Positions des croisements et calcul des constantes de structure hyperfine	128
V-2d	Comparaison avec les résultats de S. LIBERMAN ; calcul de l'effet de l'électron externe	133
V-3	<u>Les expériences de résonance magnétique</u>	137
V-3a	Etude des déplacements et asymétries de la raie de résonance magnétique	138
V-3b	Résultats : les facteurs de Landé	143
Chapitre VI	<u>Mesure de structures hyperfines par absorption à deux photons sans effet Doppler</u>	145
VI-1	<u>Le montage expérimental</u>	147
VI-1a	Le laser et le dispositif de balayage en fréquence	147
VI-1b	La cellule, les dispositifs d'excitation et de détection	149
VI-2	<u>Les résultats expérimentaux : structures fines et hyperfines des niveaux 4d'</u>	151
VI-2a	Les structures fines	151
VI-2b	Les structures hyperfines	152
VI-3	<u>Interprétation des mesures des structures hyperfines</u>	156
Conclusion		163
Appendice 1		165
Appendice 2		177
Références		183

## Introduction

Avec l'utilisation des sources laser en spectroscopie de haute résolution, les méthodes d'investigation des niveaux atomiques excités ont connu un spectaculaire renouvellement qui, si l'on se limite à l'étude des gaz et des vapeurs, peut se diviser en deux grands courants. D'un côté, les méthodes optiques de la spectroscopie hertzienne, qui sont insensibles, par principe même, à l'effet Doppler des raies optiques, ont vu leurs possibilités s'enrichir considérablement. De l'autre, des méthodes entièrement nouvelles ont été mises au point, où le caractère monochromatique de l'onde issue d'un laser monomode est utilisé pour éliminer l'effet Doppler sur le signal observé.

Le premier stade des méthodes se rattachant à la spectroscopie hertzienne, comme la double résonance [1], les croisements de niveaux [2] consiste à préparer l'atome dans un état anisotrope par pompage optique [3] bombardement électronique [4] ou une autre technique; en raison de la faible densité d'énergie lumineuse disponible sur la plupart des raies émises par les lampes classiques, l'utilisation du pompage optique était limitée aux niveaux fondamentaux, métastables et à certains niveaux de résonance. Au contraire, les lasers permettent de réaliser des expériences de pompage optique entre deux niveaux excités radiatifs d'un atome [5]. On a ainsi pu étendre à de nombreux niveaux excités les études d'effet Hanle [6], double résonance [7], croisements de niveaux [8], habituellement effectuées en pompage optique "classique". Mentionnons également le remarquable développement de la méthode de battements quantiques [9], dont les applications avec les sources conventionnelles [10] étaient assez restreintes; outre la grande densité d'énergie lumineuse, c'est la courte durée des pulses fournis par certains lasers qui est mise à profit dans ces études.

Pour les expériences de pompage optique laser, il n'est pas nécessaire de disposer d'un laser monomode; il est même souvent plus avantageux d'utiliser un laser fonctionnant en multimode avec un intervalle entre modes assez faible, de manière à exciter à peu près uniformément les atomes de toutes

les classes de vitesse. Au contraire, les nouvelles méthodes spectroscopiques reposent sur l'emploi d'un laser monomode : On peut alors supprimer, ou du moins réduire l'élargissement Doppler en excitant de manière sélective les atomes appartenant à une classe de vitesse donnée (absorption saturée [12], rétrécissement des raies de fluorescence [11], "cross-saturated absorption" [13]). Une autre méthode consiste à tirer parti du fait que le déplacement Doppler disparaît dans une transition produite par absorption de deux photons de même fréquence se propageant en sens opposés [14].

La plupart de ces techniques de spectroscopie laser ont d'abord été appliquées, au cours des années 1960, à l'étude de niveaux que l'on pouvait exciter à l'aide des raies des lasers à gaz ou à solides, ce qui représentait encore dans le domaine atomique un champ assez limité. On conçoit l'intérêt suscité par l'apparition des lasers à colorants [15], accordables sur de vastes plages de longueur d'onde, dans le visible, le proche infra-rouge et l'ultra-violet (de  $3500 \text{ \AA}$  à  $1,2 \mu$  environ). La mise au point récente de nouveaux colorants permet d'espérer développer encore cette gamme vers l'infra-rouge et l'ultraviolet.

Le travail que nous présentons ici, amorcé avant l'ère des lasers à colorants, était initialement l'extension des travaux de B. DECOMPS, M. DUMONT [6] et M. DUCLOY [16] sur l'effet Hanle de niveaux excités du néon pompés optiquement par un laser à hélium néon, à d'autres méthodes de spectroscopie hertzienne (croisements de niveaux et double résonance). Plusieurs données spectroscopiques ont été obtenues dans ces conditions sur des niveaux atteints par des transitions laser du laser à He-Ne. Le laser à Rhodamine 6G nous a ensuite permis, à l'aide d'expériences de ce type d'effectuer des mesures plus systématiques de facteurs de Landé (sur le  $^{20}\text{Ne}$ ) et de structures hyperfines (sur le  $^{21}\text{Ne}$ ) dans la configuration  $2p^5 3p$ . Nous avons dû pour cela résoudre un certain nombre de problèmes théoriques et expérimentaux posés par les caractéristiques particulières des croisements de niveaux et de la résonance magnétique en pompage optique laser.

Puis il s'est avéré que la méthode d'absorption de deux photons sans effet Doppler développée avec succès sur le sodium dans notre laboratoire [17] pouvait s'appliquer, moyennant quelques aménagements expérimentaux, à l'étude des configurations  $2p^5 4d$  et  $2p^5 5s$  du néon ; nous avons ainsi pu obtenir un certain nombre de données nouvelles sur les niveaux  $2p^5 4d'$ .

Beaucoup des grandeurs spectroscopiques que nous avons mesurées n'avaient jamais été déterminées expérimentalement; or grâce au développement récent de nouvelles méthodes théoriques "ab initio" ou "paramétriques", spécialement au laboratoire Aimé Cotton, les interactions électrostatiques, relativistes, hyperfine à l'intérieur d'un atome peuvent être traitées de manière très complète, particulièrement dans les gaz rares [18] [19]. La confrontation entre nos valeurs expérimentales et les résultats donnés par de tels calculs constitue ainsi un test de ces méthodes et a pu, dans certains cas, suggérer certaines améliorations.

Le plan de ce mémoire est composé de la manière suivante :

— Le premier chapitre présente quelques rappels sur la structure Zeeman et hyperfine de l'atome de néon.

— Les deux chapitres suivants sont consacrés à l'étude des propriétés particulières des signaux de croisements de niveaux et de la résonance magnétique en pompage optique laser.

— Au chapitre IV, nous donnons une méthode de calcul du signal d'absorption de deux photons sans effet Doppler.

Les chapitres V et VI constituent la partie expérimentale.

— Le chapitre V décrit les expériences de croisements de niveaux et double résonance. Nous y interprétons également les résultats des mesures.

— Enfin, au chapitre VI, nous analysons et discutons les expériences d'absorption à deux photons.

## Chapitre I

## STRUCTURE ZEEMAN ET HYPERFINE DE L'ATOME DE NEON

Dans ce travail , nous nous sommes intéressés à l'étude des facteurs de Landé et des structures hyperfines de niveaux du Néon issus des configurations  $2p^5 3p$ ,  $2p^5 4d$  et  $2p^5 5s$ . Ces niveaux sont parfois désignés par les notations de Paschen :

- $2p_i$  ( $i = 1, 2, \dots, 10$ ) configuration  $2p^5 3p$ .  
 - $4d$ ,  $4s'$ ,  $4s''$ ,  $4s'''$ ,  $4s''''$  configuration  $2p^5 4d$   
 - $3s_i$  ( $i=2, 3, 4, 5$ ) configurations  $2p^5 5s$ .

Les isotopes sur lesquels cette étude a porté sont le  $^{20}\text{Ne}$  (pour les facteurs de Landé ) et le  $^{21}\text{Ne}$  (pour les structures hyperfines). Ce chapitre est consacré à la discussion d'un certain nombre de propriétés de ces niveaux, qui nous seront utiles pour l'interprétation de nos résultats expérimentaux. En ce qui concerne les structures hyperfines, nos données expérimentales sont constituées par les intervalles hyperfins en champ magnétique nul pour les niveaux  $2p^5 4d'$ , et les positions des croisements de niveaux en champ fort pour les niveaux des configurations  $2p^5 3p$  et  $2p^5 5s$ .

Pour comparer ces résultats à la théorie, nous nous sommes appuyés sur l'important travail effectué dans le domaine des gaz rares par S. LIBERMAN [19]. Le calcul des structures hyperfines repose tout d'abord sur la connaissance des fonctions d'onde de structure fine (qui ont été déterminées par ailleurs par S. LIBERMAN), d'autre part il fait intervenir un certain nombre d'hypothèses concernant l'interaction hyperfine elle-même. La confrontation entre les résultats théoriques et les valeurs déduites de nos expériences permettra à la fois de tester le traitement de l'interaction hyperfine et la qualité des fonctions d'ondes utilisées.

Notons par ailleurs que les facteurs de Landé constituent également un test important des fonctions d'onde de structure fine.

Nous commençons donc dans le premier paragraphe par une brève description des niveaux de structure fine  $\alpha J$  du Néon, et nous donnons le principe de la méthode "paramétrique" utilisée par S. LIBERMAN pour l'étude des fonctions d'onde.

Le second paragraphe expose quelques propriétés des sous-niveaux hyperfins en champ magnétique nul ; partant de l'expression générale de l'hamiltonien hyperfin  $\mathcal{H}_{\text{hyp}}$  le calcul de l'interaction hyperfine à l'intérieur d'un niveau de structure fine isolé nous amène à rappeler la définition des constantes hyperfines dipolaire magnétique  $A(\alpha J)$  et quadrupolaire électrique  $B(\alpha J)$  ; nous indiquons à ce propos la méthode de calcul employée par S. LIBERMAN pour déterminer ces constantes. Nous considérons ensuite le cas où les éléments de matrice de  $\mathcal{H}_{\text{hyp}}$  entre niveaux de structure fine différents ne sont plus négligeables devant leur écart en énergie, et nous calculons les corrections du second ordre aux énergies hyperfines.

Dans le troisième paragraphe nous nous plaçons en champ magnétique non nul. Lorsque le niveau de structure fine  $\alpha J$  considéré est isolé, il faut diagonaliser  $\mathcal{H}_{\text{Zeeman}} + \mathcal{H}_{\text{hyp}}$  à l'intérieur de la multiplicité  $\alpha J$ . Nous étudions également, au second ordre de perturbation, les déplacements des sous-niveaux dûs à la partie non diagonale (entre niveaux de structure fine différents) de l'hamiltonien  $\mathcal{H}_{\text{Zeeman}} + \mathcal{H}_{\text{hyp}}$ .

### I-1 Rappel - Les niveaux de structure fine du Néon

La très grande majorité des niveaux du Néon n'est pas en couplage LS. Ceci est dû, dans des configurations du type  $2p^5 n\ell$ , à l'importance des effets relativistes du coeur  $2p^5$  qui sont comparables ou supérieurs à l'interaction électrostatique entre ce coeur et l'électron externe  $n\ell$ .

A la limite où ces interactions relativistes sont dominantes, le moment cinétique  $\vec{j}_1$  du coeur obtenu par composition des moments orbitaux et de spin des 5 électrons  $2p^5$  correspond à un bon nombre quantique  $j_1$ .

Reste à coupler ce moment cinétique avec les moments orbitaux et de spin de l'électron externe. Dans la mesure où l'interaction électrostatique d'échange entre le coeur et l'électron externe et le couplage spin-orbite de l'électron externe sont faibles devant l'interaction électrostatique directe entre l'électron externe et le coeur, on aboutit à un couplage de  $\vec{J}_1$  avec le moment orbital  $\vec{\ell}$  de l'électron  $n\ell$ , qui donne un moment cinétique  $\vec{K}$ . On couple enfin  $\vec{K}$  au spin  $\vec{s}$  de l'électron externe pour obtenir le moment cinétique total  $\vec{J}$ . Ce couplage est appelé couplage jK ou couplage de Racah [24]. En fait le couplage de Racah ne donne une bonne description des niveaux du Néon que pour les configurations assez excitées ( $n=4$  ou  $5$ ). Dans les configurations les plus basses, ni le couplage LS, ni le couplage jK ne sont réalisés, et l'on se trouve dans la plupart des cas dans une situation intermédiaire. \*)

Le calcul des fonctions propres dans un grand nombre de configurations du Néon a été effectué par S. LIBERMAN [19]. La méthode adoptée est une méthode d'optimisation paramétrique. Les paramètres sont les intégrales radiales qui interviennent dans les éléments de matrice des interactions électrostatiques et relativistes pour un certain nombre de configurations. On calcule les positions des niveaux d'énergie de structure fine en fonction de ces paramètres. On ajuste ensuite ces derniers, de manière à minimiser l'écart entre les niveaux ainsi calculés et les positions expérimentales des

---

\*) Le couplage de Racah est souvent utilisé pour la nomenclature des niveaux du Néon : les niveaux sont notés  $n\ell [K] J$  ou  $n\ell' [K] J$  où le symbole " ' " indique que  $j_1$  vaut  $1/2$  tandis que son absence indique que  $j_1$  vaut  $3/2$ . L'état  $|j_1 K \ell J\rangle$  auquel on assimile ainsi l'état propre  $|\alpha J\rangle$  est celui sur lequel  $|\alpha J\rangle$  a la plus grande composante dans le développement sur la base de Racah. Dans les configurations suffisamment élevées l'emploi de ces notations est très commode, d'autant plus que les notations de Paschen sont souvent compliquées, et sans rapport avec les nombres quantiques réels. Pour la configuration  $2p^5 3p$ , par contre, l'emploi de la notation de Racah se justifie moins bien. Nous utiliserons alors plutôt la notation de Paschen.

---

niveaux du  $^{20}\text{Ne}$ . Le calcul de S. LIBERMAN est en fait plus qu'un simple calcul de couplage à l'intérieur d'une configuration et prend en compte globalement les interactions avec un certain nombre de configurations proches. Les interactions avec les configurations lointaines sont traitées de façon approchée.

Le calcul fournit ainsi, avec une bonne précision, les positions d'un nombre de niveaux d'énergie très supérieur au nombre de paramètres introduits au départ. Ayant ainsi déterminé les fonctions d'onde, S. LIBERMAN a pu ensuite calculer les facteurs de Landé du  $^{20}\text{Ne}$  et les structures hyperfines du  $^{21}\text{Ne}$  dans les configurations correspondantes.

## I-2 La structure hyperfine

### I-2a - L'hamiltonien hyperfin

Le spin nucléaire de  $^{21}\text{Ne}$  est  $I=3/2$  [20]. Du développement de l'interaction hyperfine au moments multipolaires du noyau, nous ne retiendrons que les deux premiers termes, dipolaire magnétique et quadrupolaire électrique. Le moment magnétique octupolaire nucléaire donnerait lieu en effet à des structures complètement négligeables.

#### a) L'opérateur hyperfin dipolaire magnétique

L'opérateur hyperfin dipolaire magnétique est une somme d'opérateurs à un électron, qui s'écrit [27]

$$(I-1) \quad \mathcal{H}_{DM} = 2\mu_B\mu_N g_N \frac{1}{I} \sum_{\text{électrons } i} \left[ \frac{\vec{N}_i}{r_i^3} + \frac{8\pi}{3} \delta(\vec{r}_i) \vec{s}_i \right] \cdot \vec{I}$$

dans cette expression,  $\mu_B$  est le magnéton de Bohr,  $\mu_N$  le magnéton nucléaire,  $g_N$  le facteur de Landé nucléaire;  $g_N = -0,66176$  [21] pour le  $^{21}\text{Ne}$ . L'opérateur  $\vec{N}_i$  est une fonction du moment orbital  $\vec{l}_i$  de l'électron (i), de son spin  $\vec{s}_i$  et de sa position  $\vec{r}_i$  :

$$(I-2) \quad \vec{N}_i = \vec{l}_i - \vec{s}_i + 3\vec{r}_i \frac{\vec{r}_i \cdot \vec{s}_i}{r_i^2}$$

Il est commode d'exprimer  $\vec{N}_i$  sous la forme tensorielle suivante [22] :

$$(I-3) \quad \vec{N}_i = \vec{L}_i - \sqrt{10} (C_i^{(2)} \otimes s_i^{(1)})^{(1)}$$

où  $(C_i^{(2)} \otimes s_i^{(1)})^{(1)}$  est la partie vectorielle du produit de l'opérateur orbital associé à l'harmonique sphérique d'ordre 2,  $C^{(2)}$ , et de l'opérateur de spin  $\vec{s}$ .

Dans (I-1) le terme  $\frac{8\pi}{3} \delta(\vec{r}_i) \vec{s}_i \cdot \vec{I}$  est le terme de contact de Fermi. Il n'intervient que pour les électrons s, du moins dans un traitement non relativiste.

Nous utiliserons souvent pour  $\mathcal{H}_{DM}$  la notation suivante :

$$\mathcal{H}_{DM} = \vec{X} \cdot \vec{I}$$

Où  $\vec{X}$  est l'opérateur vectoriel électronique apparaissant dans (I-1).

$$(I-4) \quad \vec{X} = 2\mu_B \mu_N g_N \frac{1}{I} \sum_{\text{électrons } i} \left[ \frac{\vec{N}_i}{r_i^3} + \frac{8\pi}{3} \delta(\vec{r}_i) \vec{s}_i \right]$$

Lorsque l'on considère seulement l'effet de l'interaction hyperfine à l'intérieur d'un niveau de moment cinétique électronique J, le théorème de Wigner-Eckart permet d'écrire que  $\vec{X}$  est proportionnel à  $\vec{J}$ , d'où :

$$(I-5) \quad \mathcal{H}_{D,M} = A(\alpha, J) \vec{I} \cdot \vec{J}$$

Dans cette expression  $\alpha$  symbolise l'ensemble des nombres quantiques autres que J nécessaires pour repérer chacun des niveaux de structure fine.  $A(\alpha, J)$  est la constante d'interaction hyperfine dipolaire magnétique : elle dépend des caractéristiques des fonctions d'onde électroniques du niveau de structure fine considéré

$$(I-6) \quad A(\alpha, J) = \frac{\langle \alpha J || \vec{X} || \alpha J \rangle}{\sqrt{J(J+1)} (2J+1)} \quad (\text{pour } J \neq 0)$$

### b) L'opérateur hyperfin quadrupolaire électrique

La partie quadrupolaire électrique de l'opérateur interaction hyperfine s'écrit [27] :

$$(I-7) \quad \mathcal{H}_{QE} = - \frac{e^2 Q}{I(2I-1)} \sum_{\text{électrons } i} \frac{1}{r_i^3} C_i^{(2)} \cdot K^{(2)}$$

L'opérateur  $C_i^{(2)}$  a été défini plus haut (cf §  $\alpha$  précédent) ;  $K^{(2)}$  est un opérateur d'ordre 2 qui n'agit que sur les variables nucléaires.

$$(I-8) \quad K^{(2)} = \sqrt{\frac{3}{2}} (I^{(1)} \otimes I^{(1)})^{(2)}$$

$Q$  est le moment quadrupolaire électrique du noyau. Dans le cas du  $^{21}\text{Ne}$ , on a  $Q=0,093$  barn [23]. Comme plus haut, le théorème de Wigner-Eckart permet d'écrire la restriction de  $\mathcal{H}_{QE}$  à l'intérieur d'une multiplicité  $\alpha J$  sous la forme :

$$(I-9) \quad \mathcal{H}_{QE} = \frac{B(\alpha, J)}{2I(2I-1)J(2J-1)} (3(\vec{I} \cdot \vec{J})^2 + \frac{3}{2}(\vec{I} \cdot \vec{J}) - I(I+1)J(J+1))$$

où  $B(\alpha, J)$  est la constante d'interaction hyperfine quadrupolaire électrique; comme  $A(\alpha, J)$ ,  $B(\alpha, J)$  dépend des fonctions d'onde électroniques.

$$(I-10) \quad B(\alpha, J) = 2I(2I-1) \left[ \frac{J(2J-1)}{(J+1)(2J+1)(2J+3)} \right]^{1/2} \langle \alpha J || Y^{(2)} || \alpha J \rangle$$

où

$$(I-11) \quad Y^{(2)} = \frac{-e^2 Q}{I(2I-1)} \sum_{\text{électrons } i} \frac{C_i^{(2)}}{r_i^3}$$

Finalement l'hamiltonien hyperfin est la somme

$$\mathcal{H}_{\text{hyp}} = \mathcal{H}_{DM} + \mathcal{H}_{QE}$$

Pour les niveaux du néon que nous avons étudiés la contribution de  $\mathcal{H}_{QE}$  est nettement plus faible que celle de  $\mathcal{H}_{DM}$  (approximativement d'un facteur 10). La précision de nos expériences est cependant largement suffisante pour qu'il soit nécessaire d'en tenir compte.

I-2b- Calcul des énergies hyperfines au premier ordre.

$\alpha$  Expression des énergies hyperfines en fonction de  $A(\alpha J)$  et  $B(\alpha J)$

Sous l'effet de l'interaction hyperfine chaque multiplicité  $\alpha J$  se scinde en un certain nombre de sous-niveaux hyperfins  $\alpha J F$ , repérés par le nombre quantique  $F$  associé au moment cinétique total  $\vec{F} = \vec{I} + \vec{J}$ . Lorsque les différences d'énergie entre les niveaux  $\alpha J$  sont grandes devant les énergies associées au couplage hyperfin, on peut se limiter à un calcul au premier ordre en  $\mathcal{H}_{\text{hyp}}$ . On obtient alors pour les énergies  $E(\alpha J F)$  :

$$(I-12) \quad E(\alpha J F) = A(\alpha, J) C_F / 2 + B(\alpha J) D_F$$

où

$$(I-13a) \quad C_F = F(F+1) - I(I+1) - J(J+1)$$

$$(I-13b) \quad D_F = \frac{3C_F(C_F+1) - 4I(I+1)J(J+1)}{8I(2I-1)J(2J-1)}$$

Le tableau suivant donne les coefficients  $C_F/2$  et  $D_F$  de  $A$  et  $B$  dans (I-12) pour  $I=3/2$ .

J \ F	1/2		3/2		5/2		7/2		9/2	
	$C_F/2$	$D_F$								
1	-5/2	+5/4	-1	-1	+3/2	+1/4	-	-	-	-
2	-9/2	+7/8	-3	0	-1/2	-5/8	+3	+1/4	-	-
3	-	-	-6	3/5	-7/2	-3/20	0	-1/2	+9/2	+1/4

Dans le cadre de l'approximation au premier ordre en  $\mathcal{H}_{\text{hyp}}$ , la forme (I-12) permet de ramener le calcul des énergies des niveaux hyperfins à celui des deux constantes  $A(\alpha, J)$  et  $B(\alpha, J)$ .

B) Calcul de  $A(\alpha J)$  et  $B(\alpha J)$

Nous avons donné en (I-6) et (I-10) les expressions de  $A(\alpha J)$  et  $B(\alpha J)$  en fonction des éléments de matrice réduits  $\langle \alpha J || \vec{X} || \alpha J \rangle$  et  $\langle \alpha J || Y^{(2)} || \alpha J \rangle$ . Ces éléments de matrice réduits dépendent d'une part de la nature du couplage angulaire des fonctions d'onde électroniques, d'autre part d'intégrales radiales où figurent des fonctions d'ondes électroniques purement orbitales qui sont les valeurs moyennes  $\langle \frac{1}{r_i^3} \rangle$  et les valeurs à l'origine des fonctions d'onde  $|\psi_{n\ell}(r_i=0)|^2$ .

Le calcul de S. LIBERMAN mentionné au § 1 permet de résoudre la partie angulaire de ce problème : par contre il ne donne pas la valeur des intégrales radiales. C'est pourquoi, dans un second calcul [19] S. LIBERMAN a considéré ces intégrales radiales comme des paramètres à calculer à partir de données expérimentales de structures hyperfines.

Une simplification de ce calcul s'introduit du fait que le couplage hyperfin entre le noyau et les électrons est nettement plus intense lorsque ces électrons appartiennent au coeur  $2p^5$  que lorsqu'il s'agit de l'électron externe (sauf si l'électron externe est un électron s, du fait de l'existence d'un important terme de contact). S. LIBERMAN a donc négligé la contribution de l'électron externe lorsque  $\ell > 1$ . Ceci permet de réduire sensiblement le nombre de paramètres radiaux. Utilisant (I-1), (I-6) et (I-10) on peut alors écrire  $A(\alpha J)$  et  $B(\alpha J)$  sous la forme :

$$(I-14) \quad A(\alpha J) = \frac{1}{\sqrt{J(J+1)(2J+1)}} \left[ a_{2p} \langle \alpha J || \sum_{\substack{\text{électrons } i \\ \text{du coeur}}} \vec{N}_i || \alpha J \rangle + \delta_{\ell 0} a_{ns} \langle \alpha J || \vec{s} || \alpha J \rangle \right]$$

$$(I-15) \quad B(\alpha J) = -2 \left[ \frac{J(2J-1)}{(J+1)(2J+1)(2J+3)} \right]^{1/2} \left[ b_{2p} \langle \alpha J || \sum_{\substack{\text{électrons } i \\ \text{du coeur}}} C_i^{(2)} || \alpha J \rangle \right]$$

où les paramètres  $a_{2p}$ ,  $a_{ns}$  et  $b_{2p}$  contiennent la dépendance radiale

$$(I-16a) \quad a_{2p} = 2\mu_B \mu_N g_N \frac{1}{I} \left\langle \frac{1}{r^3} \right\rangle_{\text{coeur } 2p^5}$$

$$(I-16b) \quad a_{ns} = \frac{16\pi}{3} \mu_B \mu_N g_N \frac{1}{I} |\psi_{ns}(0)|^2$$

$$I(17) \quad b_{2p} = e^2 Q \left\langle \frac{1}{r^3} \right\rangle \text{ coeur } 2p^5$$

S. LIBERMAN ne disposait à l'époque que d'un petit nombre de mesures, cependant suffisant pour déterminer les paramètres  $a_{2p}$ ,  $b_{2p}$ ,  $a_{3s}$ . Les paramètres  $a_{4s}$  et  $a_{5s}$ , dont la contribution est plus faible, peuvent être calculés à priori par la formule de Fermi-Segré (fonctions d'onde quasi-hydrogéoïdes de l'électron externe). L'ensemble de ces paramètres étant connu, cette méthode a permis à S. LIBERMAN de calculer toutes les structures hyperfines dans les configurations prises en compte. Ce calcul a ensuite été raffiné pour tenir compte de certaines corrections relativistes.

Nous verrons plus loin que nos mesures ont donné les structures hyperfines d'un assez grand nombre de niveaux du  $^{21}\text{Ne}$ . L'accord avec les prévisions de S. LIBERMAN est satisfaisant : les écarts entre les structures théoriques et expérimentales sont de l'ordre de 5% en valeur relative.

Nous disposons maintenant de données expérimentales sur un plus grand nombre de structures hyperfines ; on peut penser, pour améliorer l'accord entre théorie et expérience soit à introduire un plus grand nombre de paramètres (en particulier à tenir compte du couplage hyperfin entre le noyau et l'électron externe), soit à apporter certaines modifications aux fonctions d'onde de structure fine. Ces points seront discutés aux chapitres V et VI.

#### I-2c - Calcul au second ordre

Dans les niveaux du  $^{21}\text{Ne}$  auxquels nous nous sommes intéressés, la structure hyperfine, tout en restant petite devant la structure fine, n'est pas totalement négligeable à la précision de nos mesures. Dans ce cas, la formule (I-12) n'est plus valable, et il faut lui ajouter des corrections d'ordre supérieur en  $\mathcal{H}_{\text{hyp}}$ . Nous n'aurons pas ici à aller au delà du second ordre. Le fait que  $\mathcal{H}_{\text{QE}} < \mathcal{H}_{\text{DM}}$  nous permettra, dans ce calcul au second ordre, de négliger  $\mathcal{H}_{\text{QE}}$ .

La correction d'énergie du second ordre due à  $\mathcal{H}_{\text{DM}}$  s'écrit, pour un niveau  $|\alpha J I F m_F\rangle$ .

$$(I-18) \quad \delta E(\alpha J F) = \sum_{\alpha' J'} \frac{|\langle \alpha J I F m_F | \mathcal{H}_{\text{DM}} | \alpha' J' I F m_F \rangle|^2}{E_{\alpha J} - E_{\alpha' J'}}$$

(comme l'hamiltonien  $\mathcal{H}_{DM}$  est invariant par rotation, le second nombre ne dépend pas de  $m_F$ ). Pour calculer l'élément de matrice  $\langle \alpha J I F m_F | \mathcal{H}_{DM} | \alpha' J' I F m_F \rangle$  il est nécessaire de connaître le développement des états  $|\alpha J\rangle$  sur une base simple. Nous utilisons ici la base de Racah.

$$(I-19) \quad |\alpha J\rangle = \sum_{j_1 \ell K} C_{j_1 \ell K}^{\alpha} |j_1 \ell K J\rangle$$

Les coefficients  $C_{j_1 \ell K}^{\alpha}$  du développement de l'état  $|\alpha J\rangle$  sur la base  $|j_1 \ell K J\rangle$  sont connus d'après le travail de S. LIBERMAN [19]. Dans ce calcul, l'approximation qui consiste à négliger les mélanges de configuration est largement suffisante; nous supprimerons donc la somme sur  $\ell$  dans (I-19).  $\delta E(\alpha J F)$  s'écrit alors :

$$(I-20) \quad \delta E(\alpha J F) = \sum_{\alpha' J'} \frac{1}{E_{\alpha J} - E_{\alpha' J'}} \left| \sum_{\substack{j_1 K \\ j_1' K'}} C_{j_1 \ell K}^{\alpha} C_{j_1' \ell K}^{\alpha'} \langle j_1 \ell K J I F m_F | \mathcal{H}_{DM} | j_1' \ell K' J' I F m_F \rangle \right|^2$$

Le problème est maintenant de calculer les éléments de matrice

$$\langle j_1 \ell K J I F m_F | \mathcal{H}_{DM} | j_1' \ell K' J' I F m_F \rangle$$

Or, d'une manière très générale,  $\mathcal{H}_{DM}$  peut se mettre sous la forme :

$$(I-21) \quad \mathcal{H}_{DM} = \vec{X} \cdot \vec{I}$$

où  $\vec{X}$  est défini par (I-4).  $\vec{X}$  est un opérateur vectoriel n'agissant que dans l'espace électronique. En utilisant l'expression de l'élément de matrice d'un produit scalaire d'opérateurs tensoriels [26], on obtient

$$(I-22) \quad \langle j_1 \ell K J I F m_F | \mathcal{H}_{DM} | j_1' \ell K' J' I F m_F \rangle = \sqrt{I(I+1)(2I+1)} (-)^{F+J'+I} \left\{ \begin{matrix} J & I & J' \\ I & F & I \end{matrix} \right\} \langle j_1 \ell K J || \vec{X} || j_1' \ell K' J' \rangle .$$

Pour déterminer l'élément de matrice réduit de  $\vec{X}$  nous considérons, comme plus haut (§ 2b(β)), que la contribution du coeur est prépondérante (nous ne traitons pas le cas où l'électron externe est un électron s). L'opérateur  $\vec{X}$  n'agit alors que sur le coeur, et son élément de matrice réduit

se met sous la forme :

$$(I-23) \quad \langle j_1 \ell K J \parallel \vec{X} \parallel j_1' \ell K' J' \rangle = \langle j_1 \parallel \vec{X} \parallel j_1' \rangle (-)^{J'+K+K'+\ell+j_1+1/2} \sqrt{2K+1} \sqrt{2K'+1} \sqrt{2J+1} \sqrt{2J'+1}$$

$$\begin{Bmatrix} j_1 & 1 & j_1' \\ K' & \ell & K \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} K & 1 & K' \\ J' & 1/2 & J \end{Bmatrix}$$

or d'après (I-6) :

$$(I-24) \quad \langle j_1 \parallel \vec{X} \parallel j_1' \rangle = 2\mu_B \mu_N g_N \frac{1}{I} \langle j_1 \parallel \sum_{\substack{\text{électrons } i \\ \text{du coeur}}} \frac{\vec{N}_i}{r_i^3} \parallel j_1' \rangle$$

Le théorème de Racah [25] permet de remplacer l'opérateur à 5 électrons  $\sum_i \vec{N}_i$  agissant sur la configuration  $2p^5$  par l'opérateur à un électron  $\vec{N}_1$  agissant sur la configuration complémentaire  $2p^1$ , donc

$$(I-25) \quad \langle j_1 \parallel \vec{X} \parallel j_1' \rangle = a_{2p} \langle j_1 \parallel \vec{N}_1 \parallel j_1' \rangle$$

où  $a_{2p}$  est défini par (I-16a)

Utilisant maintenant l'expression tensorielle (I-3) pour  $\vec{N}_1$ , on peut mettre  $\langle j_1 \parallel \vec{X} \parallel j_1' \rangle$  sous la forme

$$(I-26) \quad \langle j_1 \parallel \vec{X} \parallel j_1' \rangle = a_{2p} \sqrt{6} \sqrt{2j_1+1} \sqrt{2j_1'+1} \left[ (-)^{j_1'+1/2} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ j_1 & j_1' & 1/2 \end{Bmatrix} + 3 \begin{Bmatrix} 1 & 1/2 & j_1' \\ 2 & 1 & 1 \\ 1 & 1/2 & j_1 \end{Bmatrix} \right]$$

Les relations (I-20) (I-22) (I-23) et (I-26) permettent donc de calculer les corrections au second ordre des énergies hyperfines en champ magnétique nul. Nous les utiliserons dans les cas que nous avons étudiés expérimentalement, ceux des niveaux  $2p^5 4d'$  et  $2p^5 3p$ .

#### α) Niveaux 4d'

La configuration  $2p^5 4d$  comporte 12 niveaux, dont le couplage est proche du couplage de Racah. Quatre d'entre eux sont des niveaux d' ( $j_1=1/2$ ) Ces quatre niveaux, que nous avons étudiés expérimentalement en champ magnétique nul au moyen de l'excitation à deux photons (cf chap. VI), sont très proches : la distance en énergie qui les sépare les uns des autres est de l'ordre du  $\text{cm}^{-1}$ . Les intervalles hyperfins, qui sont de l'ordre du 1/30ème

de  $\text{cm}^{-1}$  ne sont donc pas très petits devant la structure fine ; la formule (I-12) n'est plus valable. Cela ne signifie pas que les constantes  $A(\alpha J)$  et  $B(\alpha J)$  définies par les relations (I-6) et (I-10) sont sans intérêt physique. En effet leur détermination expérimentale permet, par comparaison avec la valeur théorique, de tester la qualité des fonctions d'onde  $|\alpha J\rangle$  utilisées. C'est pourquoi nous adopterons la procédure suivante : partant des valeurs des écarts hyperfins déterminées expérimentalement nous leur retrancherons les corrections théoriques du second ordre et en déduirons ainsi des valeurs "expérimentales" de A et B, à comparer avec les valeurs théoriques.

### B) Niveaux $2p^5 3p$

Dans ces niveaux les corrections du second ordre sont beaucoup plus faibles ; en effet, le rapport des écarts de structure hyperfine aux écarts de structure fine est de l'ordre de  $10^{-3}$ . La précision de nos mesures étant du même ordre de grandeur, les termes du second ordre pourraient à priori être juste assez importants pour jouer un rôle, mais nous montrerons plus loin (cf chap. V) qu'il sont négligeables.

La technique expérimentale que nous avons utilisée pour étudier les structures hyperfines des niveaux  $2p^5 3p$  diffère de celle mentionnée plus haut. Nous avons employé la méthode des croisements des niveaux en champ magnétique non nul, qui ne donne que de façon indirecte les structures en champ nul. Par définition même, les déplacements Zeeman des niveaux sont alors de l'ordre de la structure hyperfine. Les corrections du second ordre dues aux éléments de matrice de l'hamiltonien Zeeman entre niveaux de structure fine différents doivent donc être également pris en considération. Le calcul correspondant sera envisagé au § 3-b suivant.

### I-3 La structure Zeeman

En présence d'un champ magnétique  $H_0$  dirigé suivant Oz, il faut ajouter à l'hamiltonien hyperfin écrit plus haut (I-1) l'hamiltonien Zeeman :

$$(I-27) \quad \mathcal{H}_Z = \omega_0 (L_Z + 2S_Z) + \omega_I I_Z$$

où  $\omega_0$  et  $\omega_I$  sont définis par :

$$(I-28) \quad \omega_0 = \mu_B H_0$$

$$(I-29) \quad \omega_I = -g_N \mu_N H_0$$

( $g_N$  et  $\mu_N$  ont été définis en (I-2a( $\alpha$ ))

Nous allons commencer par supposer négligeables les couplages dus à  $\mathcal{H}_Z + \mathcal{H}_{\text{hyp}}$  entre états  $|\alpha J\rangle$  différents. (§a) ; les effets d'un tel couplage seront envisagés ensuite (§ b).

### I-3-a- Effet Zeeman de structure hyperfine dans un niveau de structure fine isolé.

A l'intérieur d'une multiplicité  $\alpha J$ ,  $\mathcal{H}_Z$  s'écrit (I-30)

$$\mathcal{H}_Z = \omega_J J_Z + \omega_I I_Z$$

où  $\omega_J$  est donné par :

$$(I-30) \quad \omega_J = g_J \mu_B H_0$$

$g_J$  est le facteur de Landé électronique, qui dépend du couplage auquel obéit le niveau  $\alpha J$ . Les états propres de l'hamiltonien  $\mathcal{H}_{\text{hyp}} + \mathcal{H}_Z$  sont les états  $|\alpha J I F m_F\rangle$  en champ faible ( $\mathcal{H}_Z \ll \mathcal{H}_{\text{hyp}}$ ), les états  $|\alpha J I m_J m_I\rangle$  en champ fort ( $\mathcal{H}_Z \gg \mathcal{H}_{\text{hyp}}$ ) ; en champ magnétique intermédiaire, ils s'obtiennent en diagonalisant la matrice représentant  $\mathcal{H}_Z + \mathcal{H}_{\text{hyp}}$  à l'intérieur de la multiplicité  $\alpha J$ . Cette matrice n'a d'éléments qu'entre états associés à la même valeur de  $m_F = m_I + m_J$ . Nous donnons ci-dessous un exemple d'une telle matrice dans la base  $|J I m_J m_I\rangle$ , dans le cas où  $J=1$ . (Rappelons que  $I=3/2$  pour le  $^{21}\text{Ne}$ ).

$$m_F = \pm \frac{5}{2} \quad E_{m_F} = \frac{3}{2} a + \frac{b}{4} \pm \omega_J \pm \frac{3}{2} \omega_I$$

$$m_F = \pm \frac{3}{2} \quad \begin{array}{c|c} |0, \pm \frac{3}{2}\rangle & |\pm 1, \pm \frac{1}{2}\rangle \\ \hline -\frac{b}{2} \pm \frac{3}{2} \omega_I & \sqrt{\frac{3}{2}} (a + \frac{b}{2}) \\ \sqrt{\frac{3}{2}} (a + \frac{b}{2}) & \frac{a}{2} - \frac{b}{4} \pm \omega_J \pm \frac{1}{2} \omega_I \end{array}$$

$$m_F = \pm \frac{1}{2} \quad \begin{array}{c|c|c} |\mp 1, \pm \frac{3}{2}\rangle & |0, \pm \frac{1}{2}\rangle & |\pm 1, \mp \frac{1}{2}\rangle \\ \hline -\frac{3a}{4} + \frac{b}{4} \mp \omega_J \pm \frac{3}{2} \omega_I & \sqrt{\frac{3}{2}} (a - \frac{b}{2}) & \frac{\sqrt{3}}{2} b \\ \sqrt{\frac{3}{2}} (a - \frac{b}{2}) & \frac{b}{2} \pm \frac{1}{2} \omega_I & \sqrt{2} a \\ \frac{\sqrt{3}}{2} b & \sqrt{2} a & -\frac{a}{2} - \frac{b}{4} \pm \omega_J \mp \frac{1}{2} \omega_I \end{array}$$

Dans toute la suite nous noterons  $|\alpha J f m_F\rangle$  les états propres déduits de la diagonalisation de  $\mathcal{H}_Z + \mathcal{H}_{hyp}$  à l'intérieur d'une multiplicité  $\alpha J$  (étant entendu que  $I$  vaut  $3/2$ ). Lorsque nous écrivons le vecteur d'état  $|\alpha J f m_F\rangle$ ,  $f$  n'est pas considéré comme un nombre quantique, mais comme un paramètre destiné à repérer le niveau correspondant. Nous prendrons  $f = F_0$  où  $F_0$  est le nombre quantique caractérisant l'état  $|\alpha J F_0 m_F\rangle$ , limite en champ faible de l'état propre  $|\alpha J f m_F\rangle$ . Remarquons que  $m_F$  reste un bon nombre quantique.

On voit sur les tableaux ci-dessus que, même dans ce cas simple où  $J=1$ , la diagonalisation analytique est compliquée. Elle conduit à résoudre des équations du troisième degré et, si  $J > 1$ , des équations du quatrième degré. C'est pourquoi il est plus rapide de faire le calcul des valeurs propres et vecteurs propres sur ordinateur. La figure (I-1) représente le diagramme Zeeman d'un niveau de  $J=2$  tracé par cette méthode dans le cas où  $B=0$ . Dans le cas où  $J=1$ , un phénomène particulier se produit: lorsque  $B=0$  tous les croisements se produisent au même point (fig. (I-2)). Il s'agit

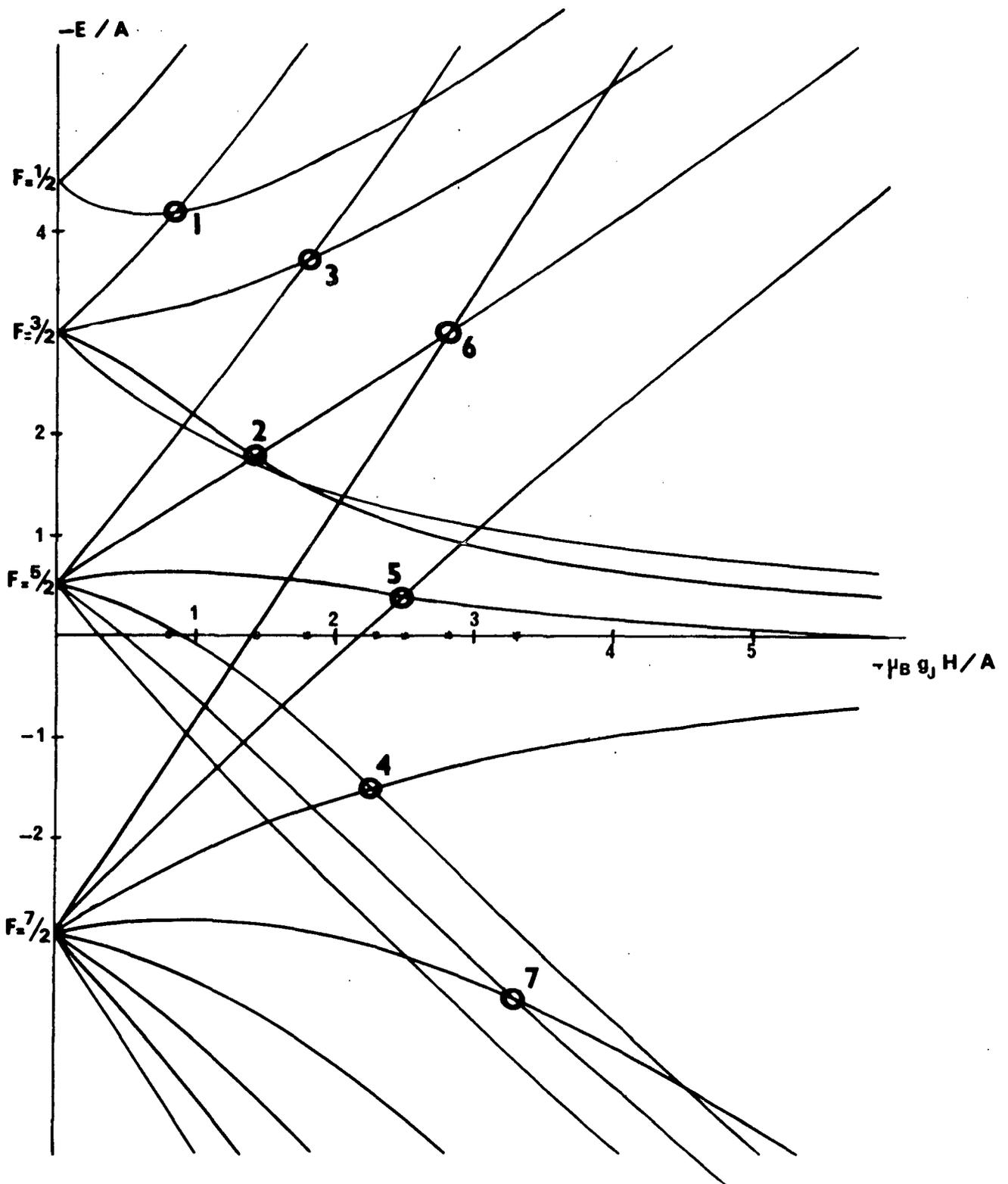


Figure 11: Diagramme hyperfin d'un niveau de  $J=2$  avec  $I=3/2$ . On a pris  $A < 0$  et  $B=0$

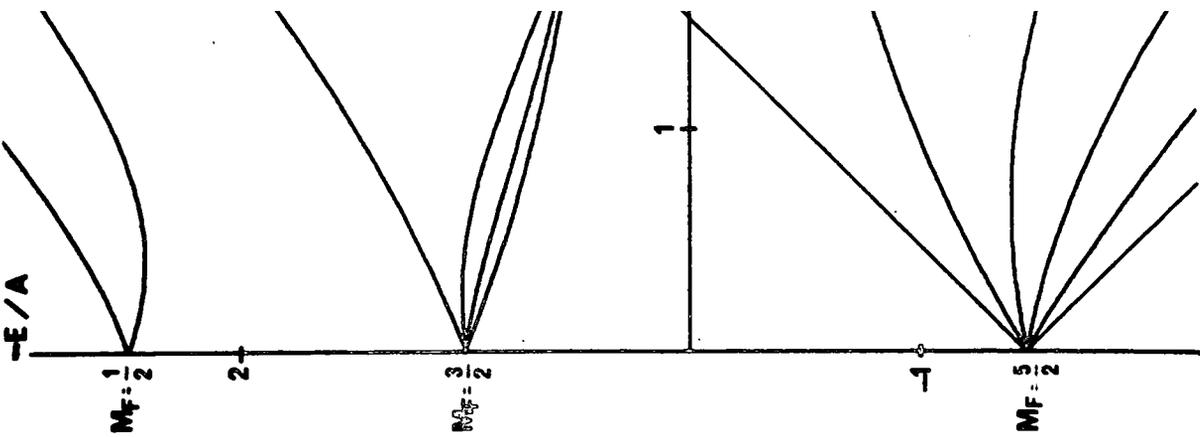
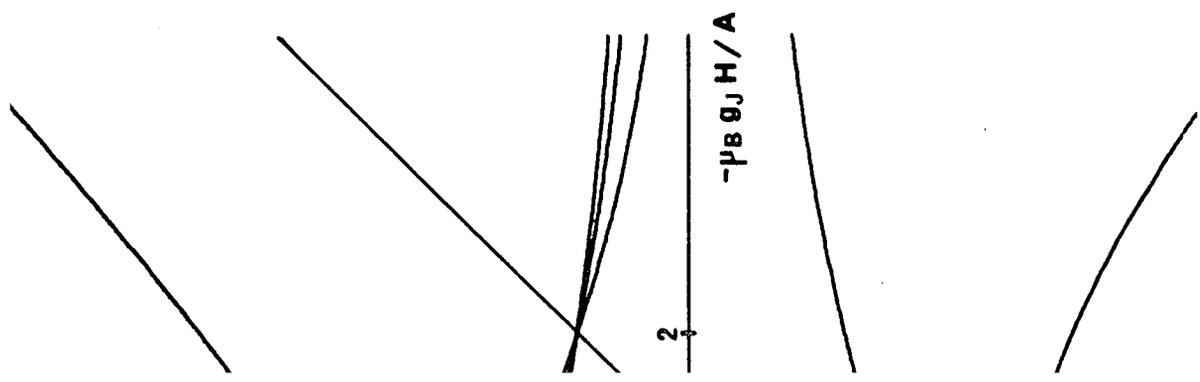


Figure I 2 a) Diagramme hyp pour B=0 (I=3)



n d'un niveau de J=1 dans le cas où A < 0

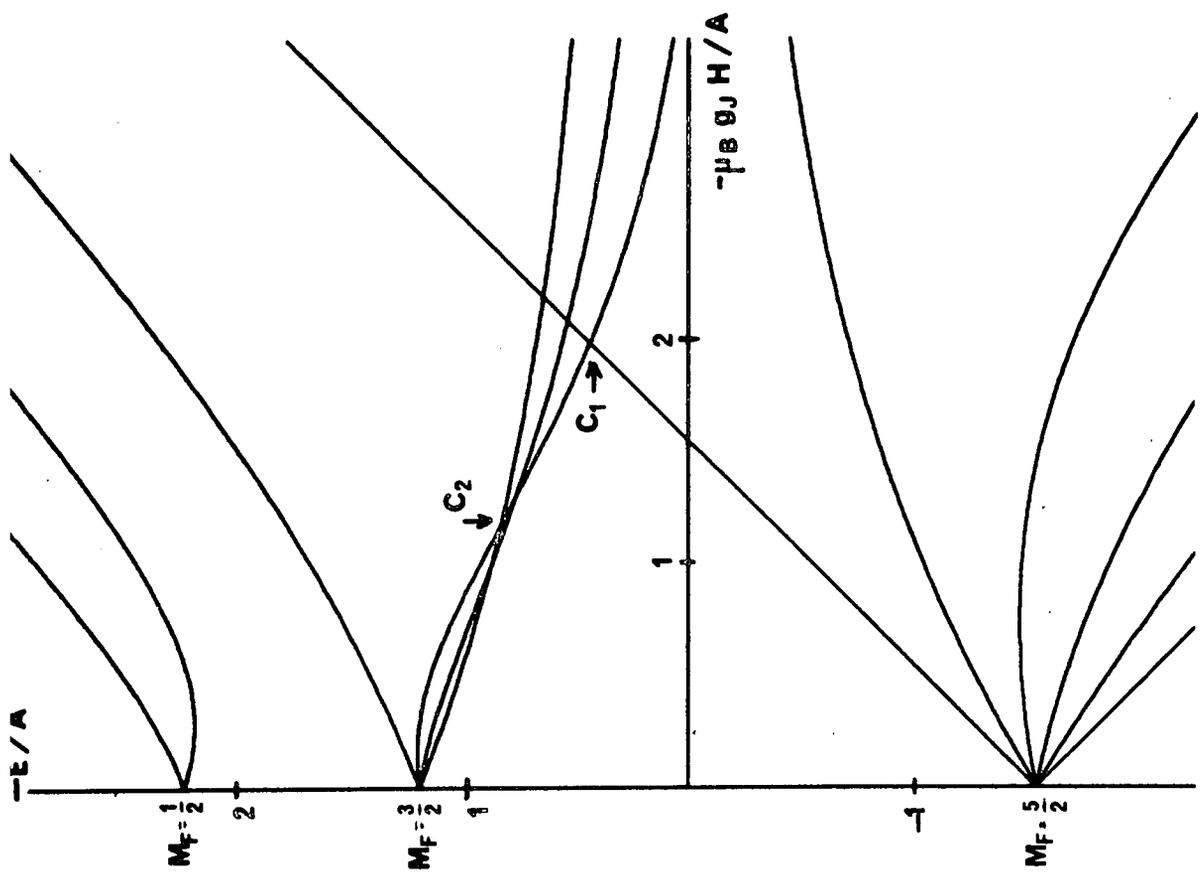


Figure I 2 b) Diagramme hyperfin d'un niveau de J=1 pour B= -A/5 (I=3/2) dans le cas où A < 0

d'une propriété générale des niveaux de  $J=1$ , quel que soit  $I$  (demi-entier) ainsi que l'on montré H. STROKE et coll. [28]. Lorsque  $B \neq 0$  les différents croisements se séparent.

Inversement la donnée de la position d'un nombre suffisant de croisements permet de remonter aux constantes de structure hyperfine  $A$  et  $B$ .

### I-3b- Effet du couplage Zeeman et hyperfin entre niveaux de structure fine différents.

Le but de ce paragraphe est de calculer un ordre de grandeur des déplacements des croisements de niveaux dus aux éléments de matrice de  $\mathcal{H}_Z + \mathcal{H}_{\text{hyp}}$  entre niveaux  $\alpha J$  différents.

Des calculs de ce type, utilisant différentes méthodes ont été développés par plusieurs auteurs pour interpréter des expériences de croisements de niveaux très précises en particulier dans les niveaux excités de différents éléments [29] [30] [31].

Nous allons considérer comme hamiltonien non perturbé l'hamiltonien de l'atome, à l'exclusion de la partie non diagonale en représentation  $|\alpha J\rangle$  de  $\mathcal{H}_Z + \mathcal{H}_{\text{hyp}}$ , qui jouera le rôle de la perturbation. Cette dernière n'intervient évidemment qu'au deuxième ordre, où apparaissent trois termes : deux termes carrés en  $\mathcal{H}_Z$  et  $\mathcal{H}_{\text{hyp}}$  respectivement, et un terme croisé.

De façon plus précise, considérons un niveau non perturbé dont le vecteur d'état s'écrit  $|\alpha J f m_F\rangle$ , et qui résulte de la diagonalisation envisagée au § I-3a précédent ( $|\alpha J f m_F\rangle$  dépend du champ magnétique  $H_0$ ). Le déplacement d'énergie correspondant s'écrit :

$$(I-32) \quad \delta E(\alpha J f m_F (H_0)) = \sum_{\alpha' J' f'} \frac{1}{E_{\alpha J f m_F} - E_{\alpha' J' f' m_F}}$$

$$|\langle \alpha J f m_F | \mathcal{H}_{DM} | \alpha' J' f' m_F \rangle|^2 + |\langle \alpha J f m_F | \mathcal{H}_Z | \alpha' J' f' m_F \rangle|^2$$

$$+ 2 \langle \alpha J f m_F | \mathcal{H}_{DM} | \alpha' J' f' m_F \rangle \langle \alpha' J' f' m_F | \mathcal{H}_Z | \alpha J f m_F \rangle$$

(comme précédemment , nous avons négligé le terme quadrupolaire électrique de l'interaction hyperfine devant le terme dipolaire magnétique). Les éléments de matrice non diagonaux (entre niveaux de structure fine différents) de  $\mathcal{H}_{DM}$  et  $\mathcal{H}_Z$  sont du même ordre de grandeur que leurs éléments de matrice à l'intérieur d'un même niveau de structure fine. Nous ne faisons donc qu'une erreur d'ordre supérieur à 2 en remplaçant dans (I-32)

$E_{\alpha J f m_F} - E_{\alpha' J' f' m_F}$  par  $E_{\alpha J} - E_{\alpha' J'}$ . La somme sur  $f'$  ne porte alors plus que sur les éléments de matrice de  $\mathcal{H}_{DM}$  et de  $\mathcal{H}_Z$ . On peut donc écrire (I-32) sous la forme :

$$(I-33) \quad \delta E(\alpha J f m_F(H_0)) = \sum_{\alpha' J'} \frac{1}{E_{\alpha J} - E_{\alpha' J'}} \left[ \begin{aligned} & \langle \alpha J f m_F | \mathcal{H}_{DM} P_{\alpha' J'} \mathcal{H}_{DM} | \alpha J f m_F \rangle + \langle \alpha J f m_F | \mathcal{H}_Z P_{\alpha' J'} \mathcal{H}_Z | \alpha J f m_F \rangle \\ & + \langle \alpha J f m_F | \mathcal{H}_{DM} P_{\alpha' J'} \mathcal{H}_Z | \alpha J f m_F \rangle + \langle \alpha J f m_F | \mathcal{H}_Z P_{\alpha' J'} \mathcal{H}_{DM} | \alpha J f m_F \rangle \end{aligned} \right]$$

où  $P_{\alpha' J'}$  est le projecteur sur la multiplicité  $\alpha' J'$ .

A l'intérieur de la multiplicité  $\alpha J$  tout se passe comme si on avait, en plus de l'hamiltonien  $\mathcal{H}_Z + \mathcal{H}_{hyp}$ , un "hamiltonien effectif" du second ordre :

$$\sum_{\alpha' J'} \frac{1}{E_{\alpha J} - E_{\alpha' J'}} \left( \mathcal{H}_{DM} P_{\alpha' J'} \mathcal{H}_{DM} + \mathcal{H}_Z P_{\alpha' J'} \mathcal{H}_Z + \mathcal{H}_{DM} P_{\alpha' J'} \mathcal{H}_Z + \mathcal{H}_Z P_{\alpha' J'} \mathcal{H}_{DM} \right)$$

Nous employons ici la même méthode que G.K. WOODGATE [31] dans l'interprétation d'expériences sur le niveau fondamental du Samarium.

Nous allons développer l'hamiltonien effectif sur une base d'opérateurs tensoriels n'agissant qu'à l'intérieur du niveau de structure fine considéré :  $J J^T_q^k \otimes I I^T_{q'}^{k'}$

Remarquons que nous aurions pu utiliser cette méthode dès le § 2c. En fait l'emploi des opérateurs effectifs ne simplifie pas appréciablement le calcul des déplacements dûs aux termes "carrés"

$$\langle \alpha J f m_F | \mathcal{H}_{DM} P_{\alpha' J'} \mathcal{H}_{DM} | \alpha J f m_F \rangle \text{ et } \langle \alpha J f m_F | \mathcal{H}_Z P_{\alpha' J'} \mathcal{H}_Z | \alpha J f m_F \rangle$$

En effet  $\mathcal{H}_{DM}$  étant diagonal en  $F, m_F$  et  $\mathcal{H}_Z$  en  $m_I, m_J$ , il n'y a qu'un nombre réduit d'éléments de matrice à calculer si l'on considère dans chaque cas le développement de  $|f m_F\rangle$  sur la base appropriée. Nous verrons cependant que la forme du développement permet de mettre en évidence des propriétés physiques simples.

Le calcul direct du terme croisé serait par contre beaucoup plus fastidieux ; la méthode des opérateurs effectifs représente ici une réelle simplification.

α) Terme "carré" en  $\mathcal{H}_{DM}$

Utilisant la forme (I-21) pour  $\mathcal{H}_{DM}$  :  $\mathcal{H}_{DM} = \vec{X} \cdot \vec{I}$  où  $\vec{X}$  est un opérateur vectoriel n'agissant que sur les moments cinétiques électroniques,  $\mathcal{H}_{DM} P_{\alpha', J'}$ ,  $\mathcal{H}_{DM}$  s'écrit

$$(I-34) \quad \mathcal{H}_{DM} P_{\alpha', J'}, \mathcal{H}_{DM} = \frac{1}{9} (-)^{J-J'} |\langle \alpha J || \vec{X} || \alpha' J' \rangle|^2 I(I+1) (2I+1)$$

$$\sum_{qq'} (-)^{q+q'} \begin{matrix} J J' & T & 1 \\ & q & -q \end{matrix} \begin{matrix} I I & T & 1 \\ & -q & -q \end{matrix} \begin{matrix} J' J & T & 1 \\ & q' & -q' \end{matrix} \begin{matrix} I I & T & 1 \\ & -q' & -q' \end{matrix}$$

On obtient la composante sur  $J J T_q^k$  du produit d'opérateurs  $J J T_q^1$   $J' J T_{q'}^1$ , en calculant la trace  $\text{Tr}_{J J T_q^1 J' J T_{q'}^1 J J T_q^k}$

$$(I-36) \quad \mathcal{H}_{DM} P_{\alpha', J'}, \mathcal{H}_{DM} = (-)^{J+J'+2I} |\langle \alpha J || \vec{X} || \alpha' J' \rangle|^2 I(I+1) (2I+1)$$

$$\sum_{k,q} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & k \\ J & J & J' \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & k \\ I & I & I \end{Bmatrix} (-)^{q+k} \begin{matrix} J J & T & k \\ & q & -q \end{matrix} \begin{matrix} I I & T & k \\ & -q & -q \end{matrix}$$

Pour  $I = \frac{3}{2}$ ,  $J \neq 0$ ,  $k$  peut prendre les valeurs 0, 1, 2. <sup>★)</sup>

---

★) Si nous avons retenu l'hamiltonien quadrupolaire électrique  $\mathcal{H}_{QE}$  il serait apparu dans ce calcul plusieurs nouveaux termes, en particulier un terme "octupolaire" provenant de  $\mathcal{H}_{DM} P_{\alpha', J'}, \mathcal{H}_{QE}$

---

Le terme correspondant à  $k=0$  donne le même déplacement pour tous les niveaux d'une même multiplicité  $\alpha J$  : nous n'en tiendrons pas compte.  $\mathcal{H}_{DM}^P \alpha' J', \mathcal{H}_{DM}$  peut finalement s'écrire comme une somme de produits scalaires d'opérateurs tensoriels :

$$(I-37) \quad \mathcal{H}_{DM}^P \alpha' J', \mathcal{H}_{DM} = \sum_{k=1,2} a_k(\alpha J, \alpha' J') J J T^k \cdot I I T^k$$

$$\text{où } a_k(\alpha J, \alpha' J') = (-)^{J+J'+2I+k} |\langle \alpha J \parallel \vec{X} \parallel \alpha' J' \rangle|^2 I(I+1)(2I+1) \begin{Bmatrix} 1 & 1 & k \\ J & J & J' \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & k \\ I & I & I \end{Bmatrix}$$

Ce développement est formellement identique au développement à l'intérieur d'un niveau  $J$ , de l'opérateur interaction hyperfine  $\mathcal{H}_{DM} + \mathcal{H}_{QE}$  : même lorsque l'interaction au second ordre n'est pas négligeable, on peut encore décrire la structure hyperfine d'un niveau  $\alpha J$  à l'aide de constantes  $A'(\alpha J)$  et  $B'(\alpha J)$  où :

$$(I-38) \quad A'(\alpha J) = A(\alpha J) + \sum_{\alpha' J'} \frac{1}{E_{\alpha J} - E_{\alpha' J'}} a_1(\alpha J, \alpha' J') \frac{3}{[I(I+1)(2I+1)J(J+1)(2J+1)]^{1/2}}$$

et une expression analogue pour  $B'(\alpha J)$ . En particulier en champ nul les intervalles hyperfins sont donnés par la formule (I-12) du § I.2b (calcul au premier ordre).

La correction du second ordre que nous venons de calculer traduit simplement la répercussion sur les positions des croisements de niveaux des effets du second ordre pour les structures en champ nul. Par contre les effets croisés entre  $\mathcal{H}_Z$  et  $\mathcal{H}_{DM}$  que nous allons traiter maintenant modifient la relation qui existe entre la structure en champ nul et la position des croisements de niveaux.

### $\beta$ ) Terme croisé

Le terme croisé s'écrit :

$$(I-39) \quad (L_z + 2S_z) P_{\alpha' J'} \vec{X} \cdot \vec{I} + \vec{X} \cdot \vec{I} P_{\alpha' J'} (L_z + 2S_z) \\ = \frac{[(I(I+1)(2I+1)]^{1/2}}{3\sqrt{3}} \langle \alpha J \parallel L_z + 2S_z \parallel \alpha' J' \rangle \langle \alpha J' \parallel \vec{X} \parallel \alpha J \rangle \times \\ \sum_q (-)^q \begin{pmatrix} J J' T_0^1 & J J' T_q^1 & I I T_{-q}^1 \\ J J' T_q^1 & J J' T_0^1 & I I T_{-q}^1 \end{pmatrix}$$

$$= \left[ \frac{I(I+1)(2I+1)}{3} \right]^{1/2} \langle \alpha J \| L_z + 2S_z \| \alpha' J' \rangle \langle \alpha' J' \| \vec{X} \| \alpha J \rangle (-)^{2J'}$$

$$2 \sum_{k \text{ pair}} \sqrt{2k+1} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & k \\ J & J & J' \end{Bmatrix} \sum_q \begin{bmatrix} 1 & 1 & k \\ q & 0 & -q \end{bmatrix} J J^T_q^k \quad I I^T_{-q}^1$$

On reconnaît dans la somme sur  $q$  l'expression du produit contracté d'ordre 1 :

$$\left[ J J^T^{(k)} \otimes I I^T^{(1)} \right] \begin{matrix} (k=1) \\ (Q=0) \end{matrix}$$

$k$  peut prendre les valeurs 0 et 2 ; (II-39) se met donc sous la forme :

$$(I-40) \quad (L_z + 2S_z) P_{\alpha' J'} (\vec{X} \cdot \vec{I}) + (\vec{X} \cdot \vec{J}) P_{\alpha' J'} (L_z + 2S_z)$$

$$= 2 \langle \alpha J \| L_z + 2S_z \| \alpha' J' \rangle \langle \alpha' J' \| \vec{X} \| \alpha J \rangle$$

$$\left[ (-)^{J-J'} \frac{1}{3(2J+1)} I_z + (-)^{2J'+1} \left[ (I(I+1)(2I+1))^{1/2} \frac{\sqrt{5}}{3} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 2 \\ J & J & J' \end{Bmatrix} \left[ J J^T^{(2)} \otimes I I^T^{(1)} \right] \right] \begin{matrix} (k=1) \\ (Q=0) \end{matrix} \right]$$

La forme que nous obtenons est la composante sur  $Oz$  d'un vecteur : il comprend deux parties :

- un terme en  $I_z$  qui peut s'interpréter comme une modification du facteur de Landé nucléaire du niveau, produit par le mélange avec d'autres niveaux  $\alpha' J'$  dû au couplage hyperfin. Dans le cas d'un niveau de  $J=0$ , cette correction peut entraîner une modification notable du facteur de Landé, comme l'ont montré J. MARGERIE et B. LAHAYE [32].

- un terme correspondant au produit contracté de l'alignement électronique par l'orientation nucléaire qui vient s'ajouter au précédent lorsque le moment cinétique du niveau est supérieur ou égal à 1.

On aurait pu penser trouver dans le développement (I-40) d'autres termes ; un terme en  $J_z$  traduisant une modification du facteur de Landé électronique ; à l'ordre considéré ce terme n'existe pas du fait de la structure de  $\mathcal{H}_{\text{hyp}}$ . On peut de même remarquer l'absence de terme en  $(\vec{I} \times \vec{J})_{Oz}$  qui a disparu dans la somme effectuée dans (I-39).

γ) Terme carré en  $\mathcal{H}_Z$

Pour le terme  $\mathcal{H}_Z P_{\alpha', J}, \mathcal{H}_Z$ , nous employons la même méthode :

$$(I-41) \quad (L_Z + 2S_Z) P_{\alpha', J}, (L_Z + 2S_Z) = \sum_k (-)^{J+J'} |\langle \alpha J || L_Z + 2S_Z || \alpha' J' \rangle|^2 \\ \sqrt{2k+1} \begin{bmatrix} 1 & 1 & k \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & k \\ J & J & J' \end{Bmatrix} J J T_0^k$$

La présence du  $3J \begin{bmatrix} 1 & 1 & k \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$  impose à  $k$  d'être pair ; d'autre part  $k \leq 2$  ; comme précédemment nous ne considérerons que l'effet du tenseur d'ordre non nul ; la seule valeur de  $k$  possible est donc 2.

$$(I-42) \quad \mathcal{H}_Z P_{\alpha', J}, \mathcal{H}_Z = (-)^{J+J'} |\langle \alpha J || L_Z + 2S_Z || \alpha' J' \rangle|^2 \sqrt{\frac{2}{3}} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 2 \\ J & J & J' \end{Bmatrix} J J T_0^2$$

$\mathcal{H}_Z P_{\alpha', J}, \mathcal{H}_Z$  a donc la symétrie de  $J_Z^2$ . Ce terme n'est pas caractéristique du  $^{21}\text{Ne}$ , il existe également pour les isotopes pairs et traduit la courbure des niveaux en fonction du champ magnétique (effet Zeeman du second ordre).

Ces expressions des 3 opérateurs effectifs font intervenir les éléments de matrice réduits  $\langle \alpha J || \mathcal{H}_Z || \alpha' J' \rangle$  et  $\langle \alpha J || \vec{X} || \alpha' J' \rangle$  qu'il est facile de calculer à partir des résultats de S. LIBERMAN (cf § 2-c). La forme tensorielle sous laquelle nous avons pu mettre les opérateurs effectifs permet maintenant de calculer leurs éléments de matrice sur une base couplée  $|\alpha J I F m_F \rangle$  ou découplée  $|\alpha J I m_J \rangle$  ; pour déterminer  $\delta E(\alpha J f m_F(H_0))$  nous devons de plus être en mesure d'exprimer  $|\alpha J f m_F(H_0) \rangle$  sur une de ces bases. Ce calcul peut être fait sur ordinateur lorsque l'on connaît les paramètres A et B de la structure hyperfine. <sup>★)</sup>

Un tel processus appliqué aux deux sous niveaux dont nous étudions le croisement nous permettra de déterminer la différence  $\delta H_0$  entre les

---

★) Dans un premier temps, on peut soit adopter pour ces paramètres les valeurs théoriques de S. LIBERMAN, soit les déduire des mesures en négligeant les effets du second ordre.

---

déterminations au premier et au second ordre de la position du croisement. Nous montrerons (cf § V-2) que dans les cas que nous avons étudiés (configuration  $2p^53p$ ),  $\delta H_0$  est toujours inférieur à l'erreur expérimentale, et qu'il n'y a pas lieu d'en tenir compte dans l'interprétation de nos mesures.

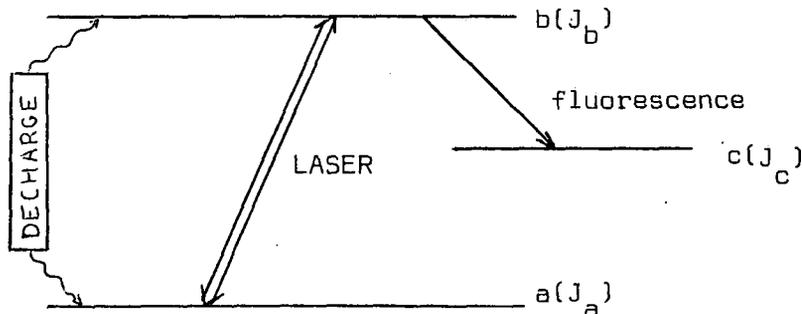
## Chapitre II

---

 LES COURBES DE CROISEMENT DE NIVEAUX EN POMPAGE OPTIQUE LASER
 

---

L'expérience dont nous allons ici interpréter un certain nombre d'aspects est la suivante : au moyen d'un faisceau lumineux issu d'un laser, on excite la transition optique entre deux niveaux de structure fine du  $^{21}\text{Ne}$ . Nous noterons a le niveau inférieur, b le niveau supérieur de cette transition,  $J_a$  et  $J_b$  leurs moments cinétiques. Ce sont tous deux des niveaux excités, dont l'un (a) peut éventuellement être métastable ; nous désignerons par  $\Gamma_a$  et  $\Gamma_b$  les inverses de leurs durées de vie naturelles. En pratique les atomes sont soumis à l'action d'une décharge dont le rôle est de peupler les niveaux a et b.



Les atomes sont d'autre part plongés dans un champ magnétique  $\vec{H}$ . Pour certaines valeurs de  $H$ , des croisements entre sous-niveaux hyperfins se produisent dans l'un ou l'autre des niveaux a et b.

Le caractère anisotrope de l'excitation laser permet d'induire des cohérences entre les sous-niveaux Zeeman et hyperfins de a et b. En observant la fluorescence émise à partir du niveau b vers un troisième niveau c on peut détecter les variations résonnantes de ces cohérences lorsque  $H$  varie autour des valeurs donnant lieu à des croisements de niveaux. C'est cette méthode que nous avons employée pour déterminer la position des croisements, et de là la structure hyperfine des niveaux considérés (cf § I-3).

Dans ce chapitre nous commencerons par quelques rappels concernant les propriétés générales des croisements de niveaux (§ 1). Le paragraphe 2 sera ensuite consacré à l'étude d'un certain nombre de caractères spécifiques des croisements de niveaux en pompage optique laser ; l'expérience que nous considérons n'est en effet pas identique à une expérience classique de pompage optique et croisement de niveaux : nous avons vu qu'aucun des deux niveaux n'est le niveau fondamental : de plus étant donné les intensités laser et les populations relatives des deux niveaux il faut tenir compte de l'émission stimulée. C'est dans ce paragraphe 2 que nous préciserons les hypothèses concernant les caractéristiques du laser (répartition spectrale, intensité etc). Pour finir, au paragraphe 3 nous envisagerons comment des effets liés à la structure de l'atome, les anticroisements entre sous-niveaux hyperfins de même  $m_F$ , peuvent déformer les courbes de résonance de croisement observées ou déplacer leur centre par rapport à la position réelle des croisements.

## II-1 Rappel des propriétés générales des résonances de croisement

### II-1-a - Principe d'une expérience de croisement de niveaux

Les premières expériences de croisement de niveaux ont été réalisées par Franken et coll. en 1959 [ 2 ] dans le cas du niveau  $2^3P$  de l'hélium. Le principe de la méthode consiste à porter les atomes dans une superposition cohérente de deux états stationnaires  $|f_{1m_{F_1}}\rangle$  et  $|f_{2m_{F_2}}\rangle$  d'énergies  $E_{f_{1m_{F_1}}}$  et  $E_{f_{2m_{F_2}}}$  ; la cohérence  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  ainsi créée dans la matrice densité  $\rho$  du système évolue à la fréquence de Bohr  $(E_{f_{1m_{F_1}}} - E_{f_{2m_{F_2}}})/h$  qui **passse** par zéro au point de croisement de niveaux. En utilisant une détection cohérente (sensible à  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$ ) on peut ainsi pointer la position du croisement de niveaux.

Appelons  $\langle f_{1m_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{2m_{F_2}} \rangle / T_p$  la vitesse de création de cette cohérence et  $\Gamma^{-1}$  son temps de relaxation que nous supposons pour l'instant uniquement dû à l'émission spontanée. L'équation d'évolution de  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  s'écrit (nous prenons un système d'unité où  $\hbar=1$ ) :

$$(II-1) \quad \frac{d}{dt} \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle = \frac{1}{T_p} \langle f_{1m_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{2m_{F_2}} \rangle - i(E_{f_{1m_{F_1}}} - E_{f_{2m_{F_2}}}) \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle - \Gamma \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$$

La solution stationnaire de cette équation est :

$$(II-2) \quad \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle = \frac{1}{T_p} \frac{\langle f_{1m_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{2m_{F_2}} \rangle}{\Gamma + i(E_{f_{1m_{F_1}}} - E_{f_{2m_{F_2}}})}$$

Supposons que dans la région du croisement  $E_{f_{1m_{F_1}}}$  et  $E_{f_{2m_{F_2}}}$  varient linéairement avec le champ magnétique et que  $\langle f_{1m_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{2m_{F_2}} \rangle$  est constant. Posons :

$$(II-3) \quad E_{f_{1m_{F_1}}} - E_{f_{2m_{F_2}}} = (g_{m_{F_1}} - g_{m_{F_2}}) \mu_B (H - H_0) = \Omega$$

où  $H_0$  est le champ magnétique où se produit le croisement de niveaux et où  $g_{m_{F_1}}$  et  $g_{m_{F_2}}$  sont les pentes des sous-niveaux  $f_{1m_{F_1}}$  et  $f_{2m_{F_2}}$  au point de croisement. (II-2) s'écrit :

$$(II-4) \quad \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle = \frac{\langle f_{1m_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{2m_{F_2}} \rangle}{\Gamma + i(g_{m_{F_1}} - g_{m_{F_2}}) \mu_B (H - H_0)}$$

La cohérence présente donc une variation résonnante dans le champ  $H=H_0$ . On détecte en fait (cf § 1b(β)) une grandeur de la forme  $\Re C \cdot \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  où  $C$  est un nombre complexe. On observera donc suivant les cas une forme d'absorption de Lorentz ou une forme de dispersion, ou un mélange des deux. La largeur commune de ces courbes lorsque l'on balaye le champ magnétique est  $\Gamma / \mu_B (g_{m_{F_1}} - g_{m_{F_2}})$ .

La lumière de fluorescence émise par l'atome, observée avec une polarisation convenable, est une grandeur sensible à la cohérence  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$ .

En effet l'intensité de la fluorescence émise avec une polarisation  $\vec{e}'$  et à une longueur d'onde correspondant à la transition du niveau b vers les niveau c, s'écrit [ 35 ] :

$$(II-5) \quad I_{bc}(\vec{e}') = \frac{3\gamma_{bc}}{8\pi} \sum_{\substack{f m_F \\ f' m'_F}} \langle f m_F | \rho | f' m'_F \rangle \langle f' m'_F | \vec{e}' \cdot \vec{D} P_c \vec{e}'^* \cdot \vec{D} | f m_F \rangle$$

Dans cette expression,  $\gamma_{bc}$  est la probabilité de transition radiative par unité de temps entre les niveaux b et c,  $\vec{D}$  la partie angulaire de l'opérateur dipôle électrique (cf (II-9));  $P_c$  est le projecteur sur l'ensemble des sous-niveaux de la multiplicité  $\alpha J_c$ .

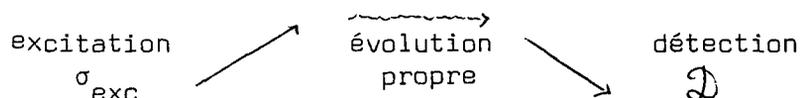
On vérifie facilement que, pour qu'apparaisse dans (II-5) la cohérence qui nous intéresse,  $\langle f_1 m_{F_1} | \rho | f_2 m_{F_2} \rangle$ , il faut que  $\vec{e}'$  soit une polarisation cohérente (différente de  $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$  ou  $\pi$ ). Suivant J.P. Descoubes [34] nous isolerons dans (II-6) la matrice de détection définie par :

$$(II-6) \quad \mathcal{D}(\vec{e}') = \frac{3\gamma_{bc}}{8\pi} (\vec{e}' \cdot \vec{D}) P_c (\vec{e}'^* \cdot \vec{D})$$

On a alors simplement :

$$(II-7) \quad I = \text{Tr}(\rho \mathcal{D})$$

La matrice  $\mathcal{D}$  joue dans notre problème un rôle symétrique  $\sigma_{exc}$ .



## II-1-b- Choix des polarisations d'excitation et de détection

### α) Excitation

Comme nous l'avons vu plus haut, l'excitation dans nos expériences était produite par un laser dont nous appellerons  $\vec{e}$  la polarisation :

il convient de choisir les polarisations  $\vec{e}$  et  $\vec{e}'$  de manière à rendre aussi grands que possible les éléments de matrice de  $\mathcal{D}$  et  $\sigma_{exc}$  entre les états dont on veut observer le croisement.

Supposons pour l'instant que nous sommes dans une situation de pompage optique classique [33] [36], le niveau étudié étant le niveau supérieur b. La matrice  $\sigma_{exc}$  s'écrit alors :

$$(II-8) \quad \sigma_{exc} = (\vec{e} \cdot \vec{D}) \sigma_a (\vec{e}' \cdot \vec{D})$$

où  $\vec{D}$  est la "partie angulaire" de l'opérateur dipôle électrique :

$$(II-9) \quad \langle b || \vec{D} || a \rangle = (-)^{J_b - J_a} \langle a || \vec{D} || b \rangle = \sqrt{2J_b + 1}$$

La restriction  ${}_{ab} \vec{D}$  de  $\vec{D}$  n'a d'éléments de matrice qu'entre a et b;  $\sigma_a$  est la matrice densité du niveau inférieur a de la transition optique. Le cas le plus simple est évidemment celui où  $\sigma_a$  est proportionnelle à la matrice unité.  $\sigma_{exc}$  a alors des propriétés angulaires qui ne dépendent que de  $\vec{e}$

$$(II-10) \quad \sigma_{exc} = n_a (\vec{e} \cdot \vec{D}) (\vec{e}' \cdot \vec{D})$$

où  $n_a$  est la population d'un sous-niveau hyperfin de a.

Comme  $\vec{D}$  n'agit que sur les variables électroniques, nous pouvons décomposer  $\sigma_{exc}$  sur une base d'opérateurs tensoriels irréductibles n'agissant que dans l'espace des moments électroniques du niveau b,  ${}^J_a J_b T_q^k$

$$(II-11) \quad \sigma_{exc} = \sum_{k,q} \sigma_{exc,q}^k {}^J_b J_b T_q^k$$

avec

$$(II-12) \quad \sigma_{exc,q}^k = n_a (2J_b + 1) \sum_{pp'} e_{-p} e_{p'}^* (-)^{J_a + J_b + P} \langle 1 | p' p | k q \rangle \begin{Bmatrix} k & 1 & 1 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix}$$

Les  $e_p$  sont les composantes standard de la polarisation  $\vec{e}$  du laser.

Examinons le cas où la polarisation  $\vec{e}$  est linéaire, perpendiculaire au champ magnétique (polarisation "σ"), qui est celui de nos expériences : prenons Ox //  $\vec{e}$  on a :  $e_0 = 0$ ,  $e_{\pm 1} = \mp 1/\sqrt{2} \cdot \sigma_{exc}$  n'a que deux composantes de q non nul,  $\sigma_{exc}^2$  et  $\sigma_{exc-2}^2$ . On retrouve le fait bien connu qu'avec une telle géométrie on ne peut exciter que les croisements tels que  $\Delta m = |m_{F_1} - m_{F_2}| = 2$ . En décomposant  $|f_{1m_{F_1}}\rangle$  et  $|f_{2m_{F_2}}\rangle$  sur la base découplée  $|J_I m_{J_I}\rangle$  on obtient :

$$(II-13) \quad \langle f_{1m_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{2m_{F_2}} \rangle = \frac{n_a}{2} (-)^{J_a + J_b} (2J_b + 1) \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 2 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix} \\ \sum_{m_I, m_{J_1}, m_{J_2}} (J_b m_{J_1} m_I | f_{1m_{F_1}}) (J_b m_{J_2} m_I | f_{2m_{F_2}}) (-)^{J_b - m_{J_1}} \sqrt{5} \begin{Bmatrix} J_b & 2 & J_b \\ -m_{J_1} & 2 & m_{J_2} \end{Bmatrix}$$

où les  $(J_b m_{J_I} m_I | f_{m_F})$  sont les coefficients du développement de l'état  $|f_{m_F}\rangle$  sur la base découplée  $|J_b m_{J_I} m_I\rangle$  ; nous sommes en couplage intermédiaire de sorte que ce ne sont pas des coefficients de Clebsch-Gordan ; ils varient avec le champ magnétique.

L'amplitude de la résonance, proportionnelle  $\langle f_{1m_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{2m_{F_2}} \rangle$  dépend donc des fonctions d'onde au point de croisement. Par ailleurs elle est proportionnelle au coefficient  $6J \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 2 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix}$  qui caractérise la création d'alignement. Par exemple, l'excitation d'un niveau  $J_b = 1$  à partir d'un niveau  $J_a = 2$  qui crée très peu d'alignement (le coefficient  $6J$  correspondant est petit), donnera également des résonances de croisement peu intenses.

Nous verrons (cf § 2-c) que l'expression (II-12) est encore valable au premier ordre de perturbation, dans le cas d'un pompage optique laser à condition de remplacer  $n_a$  par  $n_a - n_b$  (où  $n_b$  est la population d'un sous-niveau hyperfin du niveau b). Lorsque l'intensité du pompage devient forte, l'amplitude des résonances de croisement ne varie plus linéairement avec  $1/T_p$ . Cependant les expressions (II-13) et (II-19) (cf § (β) suivant) permettent encore d'estimer l'ordre de grandeur des amplitudes relatives des différents croisements d'un même niveau et nous les avons utilisées au cours des expériences pour identifier les résonances que nous étions capables de détecter.

### β) Détection

De même que  $\sigma_{exc}$ , l'opérateur de détection  $\mathcal{D}$  peut se décomposer sur une base d'opérateurs tensoriels irréductibles n'agissant que sur l'espace des moments cinétiques électroniques :

$$(II-14) \quad \mathcal{D} = \sum_q \mathcal{D}_q^k J_b^J J_b^J T_q^k$$

avec

$$(II-15) \quad \mathcal{D}_q^k = \frac{3\gamma_{bc}}{8\pi} (2J_b+1) \sum_{p,p'} e'_{-p} e'_{p'} \star (-)^{J_b+J_c+p} \langle 1 \ 1 p' p | k q \rangle \left\{ \begin{matrix} k & 1 & 1 \\ J_c & J_b & J_b \end{matrix} \right\}$$

La lumière de fluorescence est observée à la longueur d'onde correspondant à la transition atomique entre les niveaux b et c. Les  $e'_p$  sont les composantes standard de la polarisation de détection  $\vec{e}'$ .

L'étude de la détection optique des croisements de niveaux a été faite de manière détaillée par J.P. Descoubes [34]. Nous nous contenterons de rappeler quelques-uns de ses résultats concernant la géométrie que nous avons utilisée. Nous ne nous intéressons donc ici qu'à l'élément de matrice de  $\mathcal{D}$  entre deux niveaux tels que  $m_{F_1} - m_{F_2} = \pm 2$ ; dans (II-15), seul intervient le terme  $k=2$ ,  $q = \pm 2$ , ce qui entraîne  $p=p' = \pm 1$ . La polarisation de détection  $\vec{e}'$  doit donc avoir des composantes  $e'_{+1}$  et  $e'_{-1}$  toutes deux non nulles. Séparons la partie  $I_{CN}$  de l'intensité totale  $I = \text{Tr}(\rho \mathcal{D})$  qui varie de manière résonnante au croisement de niveaux. Utilisant (II-2) et (II-15), nous pouvons exprimer  $I_{CN}$  sous la forme :

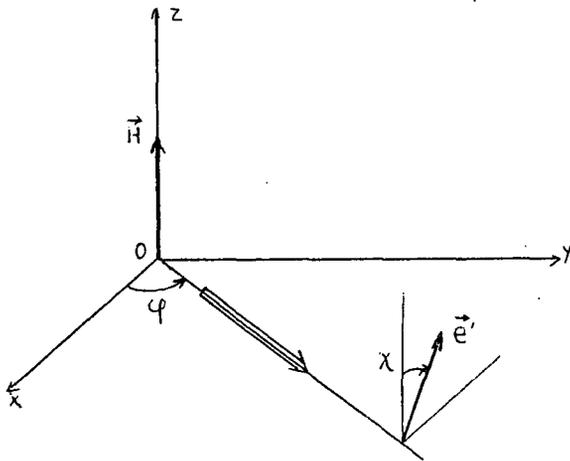
$$(II-16) \quad I_{CN} = \frac{1}{I_p} \langle f_1 m_{F_1} | \sigma_{exc} | f_2 m_{F_2} \rangle \langle f_2 m_{F_2} | D_2'' | f_1 m_{F_1} \rangle$$

$$2 \text{Re} \left[ e'_{+1} e'_{-1} \star \frac{1}{\Gamma + i\Omega} \right]$$

où  $\langle f_1 m_{F_1} | \sigma_{exc} | f_2 m_{F_2} \rangle$  est donné par (II-13) et où :

$$(II-17) \quad D_2^{\prime} = \frac{3\gamma_{bc}}{8\pi} (2J_b+1) (-)^{J_b+J_c+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_c & J_b & J_b \end{Bmatrix} J_b J_b T_{-2}$$

Nous observons la lumière de fluorescence perpendiculairement au champ magnétique avec une polarisation faisant l'angle  $\chi$  avec Oz (cf figure ci-dessous)



On a alors

$$e'_x = \sin \chi \sin \phi$$

$$e'_y = -\sin \chi \cos \phi$$

et

$$e''_1 = -\frac{e'_x + ie'_y}{\sqrt{2}} = -\sin \chi \frac{\sin \phi - i \cos \phi}{\sqrt{2}}$$

$$e''_{-1} = \frac{e'_x - ie'_y}{\sqrt{2}} = \sin \chi \frac{\sin \phi + i \cos \phi}{\sqrt{2}}$$

d'où

$$(II-18) \quad 2\Re (e''_1 e''_{-1}^* \frac{1}{\Gamma + i\Omega}) = \sin^2 \chi \frac{\Gamma \cos 2\phi + \Omega \sin 2\phi}{\Gamma^2 + \Omega^2}$$

et finalement :

$$(II-19) \quad I_{CN} = \frac{1}{T_p} \langle f_{1m_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{2m_{F_2}} \rangle \langle f_{2m_{F_2}} | D_2^{\prime} | f_{1m_{F_1}} \rangle \sin^2 \chi \frac{\Gamma \cos 2\phi + \Omega \sin 2\phi}{\Gamma^2 + \Omega^2}$$

La forme de la courbe de croisement observée sur la fluorescence est donc indépendante de  $\chi$ , qui n'intervient que pour modifier son amplitude : nulle pour  $\chi=0$ , elle est maximum pour  $\chi = \pi/2$  (détection "σ"). Par contre l'angle  $\phi$  qui repère la direction d'observation influe sur la forme des courbes : pour  $\phi = 0$  ou  $\frac{\pi}{2}$  on a une courbe d'absorption pure, pour  $\phi = \frac{\pi}{4}$  ou  $\frac{3\pi}{4}$  une courbe de dispersion. Remarquons que la résonance apparaît avec des signes opposés sur la lumière de fluorescence pour  $\phi = 0$  et  $\frac{\pi}{2}$ . Nous avons utilisé cette propriété dans l'étude expérimentale (cf § V-1).

Par ailleurs , à partir du produit des éléments de matrice  $\langle f_1 m_{F_1} | \sigma_{exc} | f_2 m_{F_2} \rangle$   $\langle f_1 m_{F_2} | D_2'' | f_1 m_{F_1} \rangle$  figurent dans (II-19) , on peut prévoir les amplitudes relatives des résonances auxquelles donnent lieu les différents croisements d'un même niveau  $\alpha J$  dans la lumière de fluorescence (moyennant la restriction indiquée au § ( $\alpha$ ) précédent).

### II-1-c- Largeur des résonances de croisement lorsque les taux de relaxation $\Gamma(k)$ des diverses observables tensorielles sont différents

Lorsque toutes les observables tensorielles du niveau b relaxent avec la même constante de temps  $1/\Gamma$  , il est clair qu'il en est de même pour la cohérence  $\langle f_1 m_{F_1} | \rho | f_2 m_{F_2} \rangle$  . On peut se demander ce qui se passe lorsque l'on peut définir plusieurs temps de relaxation dans le niveau. Cette situation se présente par exemple lorsque des collisions atomiques en phase vapeur contribuent à la relaxation à l'intérieur du niveau excité. b. Dans ce cas, l'effet global des collisions sur l'ensemble des atomes possède un caractère isotrope , ce qui simplifie considérablement le problème : chaque valeur moyenne  $\langle T_{JJ}^{(k)} \rangle_q$  d'opérateur tensoriel électronique n'est couplée qu'à elle-même, avec une constante de temps  $\Gamma(k)^{-1}$  qui ne dépend que de k. Dans une base où I et J sont découplés, la relaxation due aux collisions s'exprime donc de manière très simple. J.P. Faroux [ 37 ] et A. Omont [ 38 ] ont montré comment on pouvait passer à une base où I et J sont couplés. Dans ce cas en effet, la relaxation n'est plus diagonale et peut coupler des observables différentes (comme l'orientation de deux niveaux hyperfins).

Les expériences de croisement de niveaux sont réalisées dans un cas de couplage intermédiaire, où l'effet de la relaxation peut être très complexe. Cependant, comme l'a montré J.P. Faroux (ref [ 37 ] § IV E) on peut effectuer un calcul relativement simple si le croisement est bien isolé. La cohérence  $\langle f_1 m_{F_1} | \rho | f_2 m_{F_2} \rangle$  évolue alors à une fréquence faible comparée à celles de toutes les autres cohérences. Ceci permet de négliger le couplage dû aux collisions entre la cohérence correspondant au croisement de niveaux et toutes les autres, ce qui revient à écrire :

$$(II-20) \left[ \frac{d}{dt} \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle \right]_{\text{relaxation}} = - \Gamma_{\text{CN}} \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$$

avec

(II-21)

$$\Gamma_{\text{CN}} = \sum_{\substack{m_{J_1} m_{J_2} \\ m_{I_1} m_{I_2}}} |(JIm_{J_1} m_{I_1} | f_{1m_{F_1}})|^2 |(JIm_{J_2} m_{I_2} | f_{2m_{F_2}})|^2 \sum_{k,q} |\langle JJm_{J_1} -m_{J_2} | kq \rangle|^2 \Gamma(k)$$

dans cette expression les  $(JIm_J m_J | f_{1m_{F_1}})$  sont les coefficients du développement de l'état  $|f_{m_F}\rangle$  sur la base découplée  $|JIm_J m_I\rangle$

Pour tenir compte de l'effet des collisions, il suffit de remplacer  $\Gamma$  par  $\Gamma_{\text{CN}}$  dans l'expression (II-2). La forme de la résonance de croisement est donc toujours lorentzienne, de largeur  $\Gamma_{\text{CN}}$ . En l'absence de diffusion multiple, la largeur du croisement varie linéairement avec la pression ; elle tend à pression nulle vers l'inverse de la durée de vie naturelle du niveau.

## II-2 Excitation des croisements de niveaux par pompage optique laser

### II-2-a- Hypothèses concernant l'intensité et la largeur spectrale de la lumière de pompage.

Nous supposons que l'émission du laser utilisé se fait sur un grand nombre de modes : sa largeur spectrale  $\Delta$  est très supérieure à l'intervalle entre ces modes. Les phases relatives des modes ne sont pas fixées, (Le laser ne fonctionne pas en régime "mode-locking" ), mais sont des fonctions aléatoires du temps qui peuvent

prendre toutes les valeurs entre 0 et  $2\pi$ . D'autre part la distance entre modes est supposée très inférieure à la largeur homogène de la raie atomique sur laquelle se fait l'excitation optique (note  $\star$ ). On peut alors montrer [39] [40] que le pompage optique est équivalent à un pompage optique par une source classique de largeur  $\Delta$ . Le temps de cohérence de l'onde lumineuse agissant sur les atomes est :

$$(II-22) \quad \tau_c \simeq \Delta^{-1}$$

Nous nous plaçons toujours dans le cas où le couplage dû au laser entre les niveaux a et b n'est pas assez intense pour faire osciller les atomes entre ces niveaux pendant un temps de l'ordre de  $\tau_c$ . De façon plus précise, si  $I_0$  est l'intensité du laser (note  $\star\star$ ),  $P_{ab}$  l'élément de matrice réduit du dipôle électrique  $\vec{P}$  entre les niveaux a et b, nous ferons l'hypothèse que :

$$(II-23) \quad I_0 |P_{ab}|^2 \ll \Delta^2$$

On se trouve alors dans le cadre de la théorie dite du "rétrécissement par le mouvement" [40] [45].

---

$\star$ ) Cette hypothèse est en général bien vérifiée dans nos conditions expérimentales, car les cohérences optiques, dont le temps de relaxation donne la largeur homogène de la raie atomique, sont beaucoup plus sensibles aux collisions  $Ne^* - Ne$  et  $Ne^* - He$  que les cohérences Zeeman ou les populations. Il en résulte que l'élargissement des cohérences optiques peut être considérable (100 MHz/torr pour les collisions avec l'hélium) et supérieur à la distance entre modes du laser, alors que la largeur des grandeurs internes à un niveau est encore proche de la largeur naturelle (de l'ordre de quelques MHz pour les niveaux excités du néon que nous avons étudiés).

---

$\star\star$ ) Nous désignons en fait par  $I_0$ , la somme des carrés des amplitudes des champs électriques associés à chacun des modes, c'est-à-dire que  $I_0$  est proportionnel mais non égal à l'intensité du faisceau laser.

---

Nous supposons de plus que la largeur spectrale  $\Delta$  est largement supérieure aux fréquences de Bohr associées aux différences d'énergie à l'intérieur du niveau a et du niveau b, et que la raie laser est centrée sur la fréquence moyenne de la transition a b .

On peut alors définir le temps de pompage  $T_p$  de la transition  $a \leftrightarrow b$  [39] qui, lorsque  $\Delta$  est nettement supérieur à la largeur Doppler, vérifie la relation :

$$(II-24) \quad \frac{1}{T_p} = \frac{2\pi}{2J_b+1} \frac{|P_{ab}|^2 I_0}{\Delta} \quad (\text{on a pris } \hbar=1)$$

Dans la suite nous utiliserons souvent le taux de pompage  $\gamma = 1/T_p$  (note ★)

Nous supposerons toujours que les différentes composantes de la raie d'absorption sont suffisamment centrées sur le spectre de la lumière de pompage pour que l'on puisse négliger les shifts  $\Delta E$  liés aux transitions virtuelles [36] .

L'ensemble des hypothèses que nous avons faites revient à supposer que les processus transitoires associés à l'absorption et à l'émission stimulée sont pratiquement instantanés vis à vis des temps caractéristiques, soit de l'évolution propre des atomes à l'intérieur des niveaux a et b, soit de leur évolution sous l'effet du laser. On peut alors écrire l'évolution des matrices densité des atomes à l'intérieur des niveaux a et b sous forme d'équations différentielles du premier ordre où n'interviennent pas les cohérences optiques. Le second membre est une somme de trois termes représentant respectivement les effets de

- ◆ l'absorption et l'émission stimulée
- ◆ l'évolution propre à l'intérieur des niveaux a et b
- ◆ l'émission spontanée et les collisions

Ce schéma est celui qu'a développé C. Cohen-Tannoudji [36] pour décrire le pompage optique, auquel on a ajouté les termes dus à l'émission stimulée et

---

★) Le  $\gamma$  ainsi défini n'est pas exactement celui qu'utilise M. Ducloy [39] ;  
On a la relation :

$$\gamma_{\text{Ducloy}} = \frac{(2J_b+1)}{2} \frac{1}{T_p}$$


---

aux collisions. L'introduction de l'émission stimulée fait jouer un rôle symétrique aux niveaux a et b ; l'évolution des matrices densité,  $\rho_a$  et  $\rho_b$  due au laser s'écrit maintenant [40] [42]

$$(II-25a) \quad \left[ \frac{d}{dt} \rho_b \right]_{\text{laser}} = \frac{1}{T_p} (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) \rho_a (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) - \frac{1}{2T_p} \left[ \rho_b (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) + (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) \rho_b \right]$$

$$(II-25b) \quad \left[ \frac{d}{dt} \rho_a \right]_{\text{laser}} = \frac{-1}{2T_p} \left[ (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) \rho_a + \rho_a (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) \right] + \frac{1}{T_p} (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) \rho_b (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D})$$

$\vec{D}_{ba}$  et  $\vec{D}_{ab}$  sont définis en (II-9)

Le terme de collisions recouvre à la fois les collisions avec les électrons présents dans la décharge, qui contribuent au peuplement des niveaux excités, et les collisions interatomiques. Le peuplement par la décharge est supposé isotrope et ne crée que de la population dans les niveaux excités. La relaxation due aux collisions interatomiques, également supposée isotrope, ne couple pas les observables d'ordre tensoriel différents : il sera commode dans certains cas de développer la matrice densité sur une base d'opérateurs tensoriels irréductibles.

Les équations d'évolution globale des atomes que l'on obtient ainsi ont été résolues complètement dans un certain nombre de cas particuliers [39] [40]. Le cas auquel nous nous intéressons, croisements de niveaux de structure hyperfine dans le niveau b, est notablement plus compliqué, en particulier du fait de l'existence de nombreux sous-niveaux hyperfins et de la dépendance en champ magnétique des états stationnaires des atomes plongés dans ce champ. Nous serons donc amenés à nous restreindre à quelques situations simples, où nous présenterons un certain nombre de propriétés des résonances de croisement de niveaux.

## II-2-b- Forme des croisements de niveaux : position du problème.

Nous reprendrons dans ce paragraphe les notations définies au début du chapitre . Précisons tout d'abord les hypothèses supplémentaires dans lesquelles nous mènerons les calculs. Dans les multiplicités a et b, les états propres seront notés respectivement  $|gm_G\rangle$  et  $|fm_F\rangle$  . Nous sommes dans un cas de couplage intermédiaire et les états  $|fm_F\rangle$  et  $|gm_G\rangle$  dépendent du champ magnétique (Rappelons que f et g sont des paramètres destinés à repérer les niveaux, que nous avons définis au § I-3-a). La dépendance en champ magnétique est faible sur des intervalles de champ magnétique qui sont de l'ordre de la largeur du croisement, et nous la négligerons. De même , nous négligerons dans tout ce paragraphe la courbure des niveaux d'énergie. Ces deux points seront discutés au paragraphe 3 suivant.

Nous supposons que seule la cohérence hyperfine  $\langle f_1m_{F_1} | \rho | f_2m_{F_2} \rangle$  entre les états  $|f_1m_{F_1}\rangle$  et  $|f_2m_{F_2}\rangle$  du niveau supérieur b est résonnante dans le champ  $H_0$  . Nous négligerons toutes les autres cohérences hyperfines aussi bien dans le niveau b que dans le niveau a (note\*) (approximation séculaire). Ceci n'est légitime que si nous faisons en outre l'hypothèse que  $\gamma$ ,  $\Gamma_a$  et  $\Gamma_b$  restent très petits devant les écarts d'énergie entre les sous-niveaux hyperfins autres que  $f_1m_{F_1}$  et  $f_2m_{F_2}$  .

L'équation d'évolution de la cohérence  $\langle f_1m_{F_1} | \rho | f_2m_{F_2} \rangle$ , qui détermine la forme du croisement de niveaux, ne comporte donc au second membre que cette cohérence elle-même et les populations des sous-niveaux hyperfins de a et b. Nous aurons donc à résoudre un système différentiel à

---

★) Si le moment cinétique  $J_a$  du niveau a est nul, son facteur de Landé est un facteur de Landé nucléaire et il se peut que les cohérences hyperfines  $\rho_{m_I m'_I}$  ne soient pas négligeables dans les champs magnétiques où se produisent les croisements dans le niveau b. Dans le cas  $J_a=0$  le traitement que nous présentons dans la suite n'est valable que si la fréquence d'évolution de ces cohérences,  $\omega_I$  ( $\sim \mu_N H_0$ ) est nettement inférieure ou nettement supérieure à l'inverse de la durée de vie  $\Gamma_a$  (cf Appendice I).

---

$(2I+1)(2J_a+1+2J_b+1)+2$  équations contenant le même nombre d'inconnues réelles. Pour écrire ces équations, nous projetons (II-25a) et (II-25b) sur les bases  $|f m_F\rangle$  et  $|g m_G\rangle$  en abandonnant toutes les cohérences non résonnantes, et nous ajoutons aux seconds membres les termes d'évolution propre, de relaxation et de peuplement par la décharge. On obtient le système suivant :

$$\begin{aligned} \bullet \frac{d}{dt} \langle f_1 m_{F_1} | \rho | f_2 m_{F_2} \rangle &= -(\Gamma_{CN} + i\Omega) \langle f_1 m_{F_1} | \rho | f_2 m_{F_2} \rangle \\ &- \frac{\gamma}{2} \langle f_1 m_{F_1} | \rho | f_2 m_{F_2} \rangle (B_{f_1 f_1} + B_{f_2 f_2}) - \frac{\gamma}{2} \left[ \langle f_1 m_{F_1} | \rho | f_1 m_{F_1} \rangle + \langle f_2 m_{F_2} | \rho | f_2 m_{F_2} \rangle \right] B_{f_1 f_2} \\ &+ \gamma \sum_{g m_G} D_{f_1 g} D_{g f_2} \langle g m_G | \rho | g m_G \rangle \end{aligned} \quad (\text{II-26})$$

$$\begin{aligned} \bullet \frac{d}{dt} \langle f m_F | \rho | f m_F \rangle &= - \sum_{f' m_{F'}} \Gamma_{ff'} \langle f' m_{F'} | \rho | f' m_{F'} \rangle + \lambda_b \\ &- \gamma \langle f m_F | \rho | f m_F \rangle B_{ff} - \delta_{f, f_1 \text{ ou } f_2} \frac{\gamma}{2} \left[ \langle f_1 m_{F_1} | \rho | f_2 m_{F_2} \rangle B_{f_2 f_1} + \langle f_2 m_{F_2} | \rho | f_1 m_{F_1} \rangle B_{f_1 f_2} \right] \\ &+ \gamma \sum_{g m_G} \langle g m_G | \rho | g m_G \rangle D_{fg} D_{gf} \end{aligned} \quad (\text{II-27})$$

$$\begin{aligned} \bullet \frac{d}{dt} \langle g m_G | \rho | g m_G \rangle &= - \sum_{g' m_{G'}} \Gamma_{gg'} \langle g' m_{G'} | \rho | g' m_{G'} \rangle + \gamma_{ba} \sum_{f m_F} t_{gf} \langle f m_F | \rho | f m_F \rangle + \lambda_a \\ &+ \gamma \sum_{f m_F} \langle f m_F | \rho | f m_F \rangle D_{gf} D_{fg} + \gamma \left[ \langle f_1 m_{F_1} | \rho | f_2 m_{F_2} \rangle D_{g f_1} D_{f_2 g} + \langle f_2 m_{F_2} | \rho | f_1 m_{F_1} \rangle D_{g f_2} D_{f_1 g} \right] \\ &- \gamma \langle g m_G | \rho | g m_G \rangle A_{gg} \end{aligned} \quad (\text{II-28})$$

Il faut adjoindre à (II-26) l'équation complexe conjuguée décrivant l'évolution de  $\langle f_2 m_{F_2} | \rho | f_1 m_{F_1} \rangle$ .

on a introduit les notations suivantes :

$$(II-29) \quad B_{ff'} = \langle fm_F | (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) | f'm_{F'} \rangle$$

$$(II-30) \quad A_{gg'} = \langle gm_G | (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) | g'm_{G'} \rangle$$

$$(II-31) \quad D_{fg} = \langle fm_F | \vec{e}_{ba} \cdot \vec{D} | gm_G \rangle$$

$$(II-32) \quad D_{gf} = \langle gm_G | \vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D} | fm_F \rangle$$

Pour la simplicité de l'écriture nous avons omis dans ces notations les indices  $m_F$ ,  $m_{F'}$ ,  $m_G$ ,  $m_{G'}$ , qui restent sous-entendus.

$\lambda_a$  ( $\lambda_b$ ) est le taux de peuplement par la décharge d'un sous-niveau  $gm_G$  ( $fm_F$ ) de a(b) (le taux de peuplement est le même pour tous les sous-niveaux d'une même multiplicité).

$\Gamma_{ff'}$  et  $\Gamma_{gg'}$  sont les éléments de la matrice de relaxation due à l'émission spontanée et aux collisions. Les éléments diagonaux  $\Gamma_{ff}$  sont les termes de départ des atomes du sous-niveau  $fm_F$ ; les termes non diagonaux représentent le transfert du sous-niveau  $fm_F$  au sous-niveau  $f'm_{F'}$ , de la même multiplicité (cf ref. [37])

$\delta_{f,f_1 \text{ ou } f_2} = 1$  si  $|fm_F\rangle = |f_1m_{F_1}\rangle$  ou  $|f_2m_{F_2}\rangle$ , et est nul dans les autres cas.

$\gamma_{ba}$  est la probabilité de transition par émission spontanée du niveau b au niveau a.  $\gamma_{ba} = \lambda_r \Gamma_b$ , où  $\lambda_r$  est le rapport de branchement de la transition  $b \rightarrow a$ ; dans nos expériences  $1/\lambda_r$ , vaut au plus quelques unités. Nous considérerons dans la suite des calculs que  $\gamma_{ba}$  et  $\Gamma_b$  sont du même ordre de grandeur.

$t_{gf}$  est le coefficient de transfert par émission spontanée de la population du sous niveau  $fm_F$  au sous niveau  $gm_G$  (cf ref. [35])

( $\Omega$  est défini en (II-3),  $\Gamma_N$  en (II-21).

Dans chacune des équations, les termes de la première ligne concernant l'évolution propre, la relaxation et le peuplement par la décharge; les termes de la deuxième ligne représentent l'émission stimulée, ceux de la troisième ligne l'absorption. Remarquons que les populations d'un même niveau

ne sont pas couplées directement entre elles par l'émission stimulée et l'absorption ; la cohérence  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  est couplée aux populations des sous-niveaux  $f_{1m_{F_1}}$  et  $f_{2m_{F_2}}$  et aux populations du niveau inférieur a.

Dans un premier temps (§ 2c) nous donnerons la solution de ce système au premier ordre en  $\gamma$  ; ce traitement n'est valable que si le temps de pompage  $T_p = 1/\gamma$  est grand devant les autres constantes de temps du système, qui sont de l'ordre des durées de vie naturelles  $1/\Gamma_a$  et  $1/\Gamma_b$ . On suppose donc  $\gamma \ll \Gamma_a, \Gamma_b$ .

A l'ordre suivant en  $\gamma$  apparaissent à la fois un élargissement du croisement de niveau et une saturation de sa hauteur, qui ne croît plus proportionnellement à  $\gamma$  ; de plus les populations présentent également une résonance avec le champ magnétique. Au § 2d nous nous intéresserons à l'élargissement au second ordre en  $\gamma$ , (qui donne dans l'expression de la largeur de la résonance un terme d'ordre 1 en  $\gamma$ ). Nous distinguerons ici deux cas correspondant aux situations expérimentales que nous avons examinées.

( $\alpha$ )  $\gamma \ll \Gamma_a$  et  $\Gamma_b$ ,  $\Gamma_a$  et  $\Gamma_b$  étant d'ordre de grandeur comparable. On calcule les termes au second ordre en  $\gamma/\Gamma_\alpha$  ( $\Gamma_\alpha = \Gamma_a$  ou  $\Gamma_b$ ) contribuant à l'élargissement de la résonance de croisement.

( $\beta$ )  $\Gamma_a \ll \gamma \ll \Gamma_b$  : on doit prendre en considération les termes à tous les ordres en  $\gamma/\Gamma_a$  et jusqu'au second ordre en  $\gamma/\Gamma_b$ .

Le cas ( $\alpha$ ) correspond à un pompage optique faible entre deux niveaux excités de durées de vie comparables. Le cas ( $\beta$ ) correspond au pompage optique d'un niveau excité de courte durée de vie à partir d'un métastable ;  $\Gamma_a$  et  $\Gamma_b$  sont alors d'ordres de grandeur très différents et le pompage optique peut être faible dans le niveau b alors que le niveau a est déjà saturé.

Enfin (§ 2e) nous donnerons une résolution formelle du système (II-26, 27, 28) valable quels que soient les ordres de grandeur relatifs de  $\gamma$ ,  $\Gamma_a$  et  $\Gamma_b$  (tout en restant dans les hypothèses énoncées au début des § II 2a et II 2b). Ceci nous permettra de dégager quelques propriétés générales des croisements de niveaux dans les conditions de pompage optique laser en raie large.

II-2c Calcul au premier ordre en  $\gamma$ .

A l'ordre 0 en  $\gamma$ , la solution stationnaire du système (II-26-27-28) est

$$\begin{aligned} \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle &= 0 \\ \langle f_{m_F} | \rho | f_{m_F} \rangle &= \frac{\lambda_b}{\Gamma_b(0)} \quad \text{quel que soit } f_{m_F} \\ \langle g_{m_G} | \rho | g_{m_G} \rangle &= \frac{\lambda_a}{\Gamma_a(0)} \quad \text{quel que soit } g_{m_G} \end{aligned}$$

où  $\Gamma_a(0)^{-1}$  et  $\Gamma_b(0)^{-1}$  sont les temps de relaxation de la population dans les niveaux a et b (lorsque tous les sous-niveaux sont peuplés également, la relaxation ne peut pas créer de différence de populations). Posons

$$\begin{aligned} n_b &= \frac{\lambda_b}{\Gamma_b(0)} \\ n_a &= \frac{\lambda_a}{\Gamma_a(0)} \end{aligned}$$

Au premier ordre en  $\gamma$  (II-26) s'écrit :

$$(II-33) \quad \frac{d}{dt} \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle = -(\Gamma_{CN} + i\Omega) \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle + \gamma(n_a - n_b) B_{f_1 f_2}$$

La solution stationnaire de cette équation est

$$(II-34) \quad \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle = \gamma (n_a - n_b) \frac{\langle f_{1m_{F_1}} | (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) | f_{2m_{F_2}} \rangle}{\Gamma_{CN} + i\Omega}$$

Au premier ordre en  $\gamma$ , la résonance est lorentzienne, d'amplitude proportionnelle à  $\gamma$  et sa largeur est indépendante de l'intensité du pompage optique. Lorsque  $n_a \gg n_b$ , cette expression se ramène à celle que l'on obtient dans une situation de pompage optique classique (cf II-10); quand les deux niveaux ont des populations du même ordre de grandeur, on ne peut plus négliger l'émission stimulée devant l'absorption et  $n_a$  doit être remplacé par  $n_a - n_b$ . Les propriétés angulaires du pompage optique restent strictement

les mêmes qu'au § II-1b ; en particulier les conclusions que nous avons obtenues en ce qui concerne l'amplitude des croisements sont encore valables ici .

### II-2d Elargissement de la résonance de croisement (Terme du 1er ordre en $\gamma$ )

Créée au premier ordre en  $\gamma$  , la cohérence  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  est , aux ordres suivants, couplée à elle-même et aux populations des niveaux a et b. Les équations (II-27) et (II-28) montrent comment, à l'inverse ces populations sont couplées à la cohérence. Il en résulte au second membre de (II-26), une dépendance supplémentaire de la cohérence  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  en champ magnétique par l'intermédiaire des termes des deuxième et troisième lignes, ce qui modifie la forme de la résonance de croisement. Nous allons nous limiter ici à l'étude des termes du second ordre en  $\gamma$  qui contribuent à la forme de la résonance . D'après ce que nous venons de dire, ces termes dépendent de  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  (ou de son complexe conjugué) au premier ordre en  $\gamma$  . C'est sous cette forme que nous les reporterons dans (II-26) pour obtenir le résultat cherché. Nous montrerons que du moins dans le cas où la polarisation du laser est linéaire, l'effet de ces termes du second ordre se ramène à un élargissement des formes d'absorption ou de dispersion observées .

Rappelons que conformément à ce qui a été dit plus haut, second ordre en  $\gamma$  signifie second ordre en

- $\gamma/\Gamma_a$  (où  $\Gamma_a = \Gamma_a$  ou  $\Gamma_b$ ) lorsque  $\Gamma_a$  et  $\Gamma_b$  sont du même ordre de grandeur (cas (α))
- $\gamma/\Gamma_b$  lorsque  $\Gamma_a \ll \Gamma_b$  ;  $\Gamma_a$  peut alors être du même ordre que  $\gamma$  et nous considérerons les termes à tous les ordres en  $\gamma/\Gamma_a$  (cas (β)).

Nous allons traiter successivement les deux cas .

#### α) $\gamma \ll \Gamma_a - \Gamma_b \ll \Gamma_a \approx \Gamma_b$ . a et b sont tous deux des niveaux excités radiatifs

Examinons les termes qui apparaissent aux deuxième et troisième lignes de l'équation (II-26). Le terme d'émission stimulée

$-\gamma/2 \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle (B_{f_1 f_1} + B_{f_2 f_2})$  qui couple la cohérence à elle-même est évidemment d'ordre 2 en  $\gamma$ . Les populations qui figurent ensuite dans

l'équation (II-26) ,  $\langle f_{m_F} | \rho | f_{m_F} \rangle$  et  $\langle g_{m_G} | \rho | g_{m_G} \rangle$  s'expriment à leur tour en fonction de  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  . Mais en prenant la solution stationnaire de (II-27) et (II-28) on voit que :

$$\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{1m_{F_1}} \rangle \sim \frac{\gamma}{\Gamma_b} \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle + \text{termes indépendants du champ magnétique au second ordre en } \gamma$$

$$\langle g_{m_G} | \rho | g_{m_G} \rangle \sim \frac{\gamma}{\Gamma_a} \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle + \text{termes indépendants du champ magnétique au second ordre en } \gamma$$

Les termes dépendant du champ magnétique dans ces populations apportent dans (II-26) une contribution qui est d'ordre 3 en  $\gamma/\Gamma_b$  ou  $\gamma/\Gamma_a$  ; ils ne sont donc pas à considérer ici .

A cet ordre, nous obtenons donc simplement un élargissement de la résonance de croisement, qui garde la forme lorentzienne obtenue au § 2-c. La largeur de la courbe est maintenant :

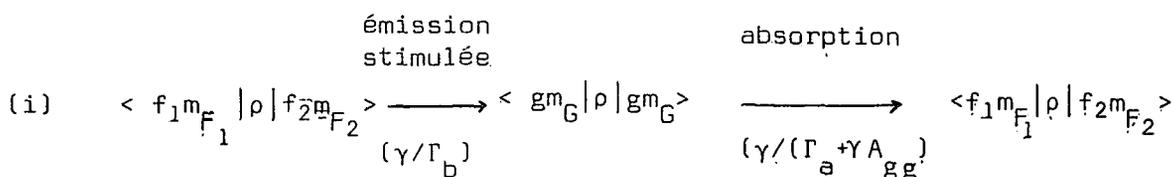
$$\Gamma_{CN} + \gamma/2 (B_{f_1 f_1} + B_{f_2 f_2})$$

L'interprétation physique en est claire : par suite de l'émission stimulée la durée de vie moyenne de la cohérence est réduite.

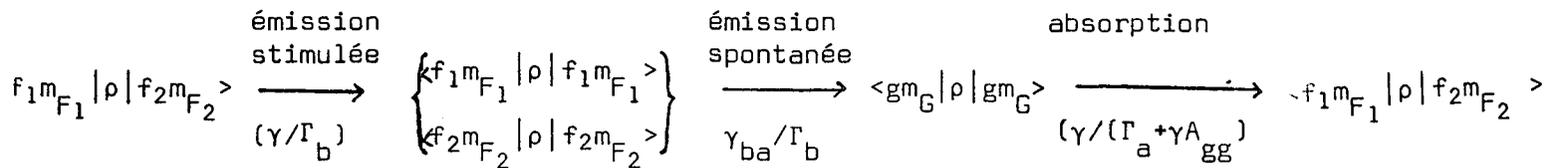
$\beta)$   $\Gamma_a \ll \gamma \ll \Gamma_b$  a est un niveau métastable, b un niveau excité radiatif

Pour simplifier, nous supposons ici qu'il y a qu'un seul temps de relaxation dans chacun des niveaux a et b,  $\Gamma_a^{-1}$  et  $\Gamma_b^{-1}$  . De ce fait , il n'y a plus de transfert dû à la relaxation entre les différents sous-niveaux hyperfins d'une même multiplicité ( $\gamma_{ff'} = 0$  pour  $f_{m_F} \neq f'_{m'_F}$ ).

Nous prenons maintenant en compte les termes dépendant du champ magnétique jusqu'au second ordre en  $\gamma/\Gamma_b$  et à tous les ordres en  $\gamma/\Gamma_a$  . En plus du terme direct d'émission stimulée considéré au paragraphe précédent, nous devons inclure les termes dépendant des populations que nous avions négligés. L'examen du système (II-26 -27- 28) permet de se convaincre que tous ces termes correspondent aux deux schémas ci-dessous :



(ii)



(Nous avons indiqué entre parenthèses l'ordre de grandeur du coefficient avec lequel est transféré le terme situé à gauche de la flèche).

Sur le premier schéma (i) on voit que l'émission stimulée provoque une modification des populations du niveau inférieur a, liée à la présence de la cohérence  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  dans le niveau b. Cette modification des populations du niveau inférieur influe à son tour sur la création de la cohérence  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  par absorption à partir du niveau a. Dans le second schéma (ii) le couplage de la cohérence  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  aux populations du niveau inférieur se fait en deux étapes : par suite de l'émission stimulée, les populations du niveau supérieur b sont affectées par la présence de la cohérence ; cette modification se transmet aux populations du niveau inférieur sous l'effet de l'émission spontanée. Comme  $\gamma_{ba}/\Gamma_b$  est de l'ordre de 1, l'ensemble de ces deux processus est du premier ordre en  $\gamma/\Gamma_b$ .

Avant d'effectuer le calcul, remarquons que le couplage par l'intermédiaire des populations fait nécessairement intervenir de manière symétrique  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  et son complexe conjugué (puisque les populations sont des grandeurs réelles). La cohérence  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  va donc être couplée, au second ordre en  $\gamma$ , à son complexe conjugué, ce qui entraîne a priori une modification de la forme du croisement en fonction du champ magnétique.

Ecrivons la solution stationnaire de (II-28) en ne conservant que les termes qui contribuent aux schéma (i) et (ii)

$$\begin{aligned}
 \text{(II-35)} \quad \langle g_{m_G} | \rho | g_{m_G} \rangle = & \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma A_{gg}} \left[ \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle^D D_{gf_1} D_{f_2g} + \langle f_{2m_{F_2}} | \rho | f_{1m_{F_1}} \rangle^D D_{gf_2} D_{f_1g} \right] \text{(i)} \\
 & + \frac{\gamma_{ba}}{\Gamma_a + \gamma A_{gg}} \left[ \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{1m_{F_1}} \rangle^t t_{gf_1} + \langle f_{2m_{F_2}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle^t t_{gf_2} \right] \text{(ii)}
 \end{aligned}$$

+ termes indépendants du champ magnétique du 1er ordre en  $\gamma/\Gamma_b$

Nous prenons maintenant la solution stationnaire de (II-27), ce qui nous permet d'écrire  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  et  $\langle f_{2m_{F_2}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  en fonction de la cohérence,

$$(II-36) \quad \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{1m_{F_1}} \rangle = \frac{-\gamma}{2\Gamma_b} \left[ \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle B_{f_2 f_1} + \langle f_{2m_{F_2}} | \rho | f_{1m_{F_1}} \rangle B_{f_1 f_2} \right]$$

+ termes indépendants du champ magnétique à cet ordre.

$$(II-37) \quad \langle f_{2m_{F_2}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle = \frac{-\gamma}{2\Gamma_b} \left[ \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle B_{f_2 f_1} + \langle f_{2m_{F_2}} | \rho | f_{1m_{F_1}} \rangle B_{f_1 f_2} \right]$$

+ termes indépendants du champ magnétique à cet ordre.

(II-35) devient donc :

$$(II-38) \quad \langle g_{m_G} | \rho | g_{m_G} \rangle = \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma A_{gg}} \left[ \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle D_{gf_1} D_{f_2 g} + \langle f_{2m_{F_2}} | \rho | f_{1m_{F_1}} \rangle D_{gf_2} D_{f_1 g} \right] \\ - \frac{\gamma_{ba}}{2\Gamma_b} \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma A_{gg}} (t_{gf_2} + t_{gf_2}) \left[ \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle B_{f_2 f_1} + \langle f_{2m_{F_2}} | \rho | f_{1m_{F_1}} \rangle B_{f_1 f_2} \right]$$

+ termes indépendants du champ magnétique à cet ordre

Finalement, en reportant dans (II-26), on obtient

$$(II-39) \quad \frac{d}{dt} \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle = -(\Gamma_b + i\Omega) \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle \\ - \frac{\gamma}{2} (B_{f_1 f_1} + B_{f_2 f_2}) \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle \\ + \gamma \sum_{g m_G} \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma A_{gg}} D_{f_1 g} D_{g f_2} \left[ \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle D_{g f_1} D_{f_2 g} + \langle f_{2m_{F_2}} | \rho | f_{1m_{F_1}} \rangle D_{g f_2} D_{f_1 g} \right] \\ - \gamma \frac{\gamma_{ba}}{2\Gamma_b} \sum_{g m_G} \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma A_{gg}} D_{f_1 g} D_{g f_2} (t_{g f_1} + t_{g f_2}) \left[ \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle B_{f_2 f_1} \right. \\ \left. + \langle f_{2m_{F_2}} | \rho | f_{1m_{F_1}} \rangle B_{f_1 f_2} \right]$$

+ termes indépendants du champs magnétique au second ordre en  $\frac{\gamma}{r}$ .

Il faut adjoindre à (II-39) l'équation complexe conjuguée.

La dépendance en champ magnétique de  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  est donc plus complexe qu'en  $(\alpha)$ . Cependant les résultats restent relativement simples lorsque la polarisation est linéaire. Nous allons ici nous restreindre à ce cas.

Les éléments de matrice  $A_{gg'}$ ,  $B_{ff'}$ , et  $D_{gf}$  sont alors réels (pour un choix convenable des axes de référence) et les coefficients de  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  et  $\langle f_{2m_{F_2}} | \rho | f_{1m_{F_1}} \rangle$  au second membre de (II-34) sont maintenant égaux.

Posons :

$$\rho_c = \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$$

$$\rho_c^* = \langle f_{2m_{F_2}} | \rho | f_{1m_{F_1}} \rangle$$

En prenant la somme et la différence de (II-39) et de l'équation complexe conjuguée, on obtient :

$$(II-40) \quad \frac{d}{dt} (\rho_c + \rho_c^*) = -\Gamma_b (\rho_c + \rho_c^*) - i\Omega (\rho_c - \rho_c^*) - \frac{\gamma}{2} (B_{f_1 f_1} + B_{f_2 f_2}) (\rho_c + \rho_c^*)$$

$$+ \gamma \cdot 2(\rho_c + \rho_c^*) \sum_{gm_G} \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma A_{gg}} \left[ D_{f_1 g}^2 D_{g f_2}^2 - D_{f_1 g} D_{g f_2} B_{f_1 f_2} (t_{g f_1} + t_{g f_2}) \frac{\gamma_{ba}}{2\Gamma_b} \right]$$

+  $\mathcal{A}$  (termes indépendants du champ magnétique au second ordre en  $\gamma/\Gamma_b$ ).

(II-41)

$$\frac{d}{dt} (\rho_c - \rho_c^*) = -\Gamma_b (\rho_c - \rho_c^*) - i\Omega (\rho_c + \rho_c^*) - \frac{\gamma}{2} (B_{f_1 f_1} + B_{f_2 f_2}) (\rho_c - \rho_c^*)$$

(Comme le couplage par le laser ne fait intervenir que des nombres réels, il n'y a pas d'autres termes dans (II-41)).

Posons :

$$(II-42) \quad \Delta\Gamma_1 = \frac{\gamma}{2} (B_{f_1 f_1} + B_{f_2 f_2})$$

$$(II-43) \quad \Delta\Gamma_2 = -2\gamma \sum_{gm_G} \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma A_{gg}} \left[ D_{f_1 g}^2 D_{f_2 g}^2 - D_{f_1 g} D_{g f_2} B_{f_1 f_2} (t_{g f_1} + t_{g f_2}) \frac{\gamma_{ba}}{2\Gamma_b} \right]$$

La solution stationnaire du système (II 40, 41) est finalement :

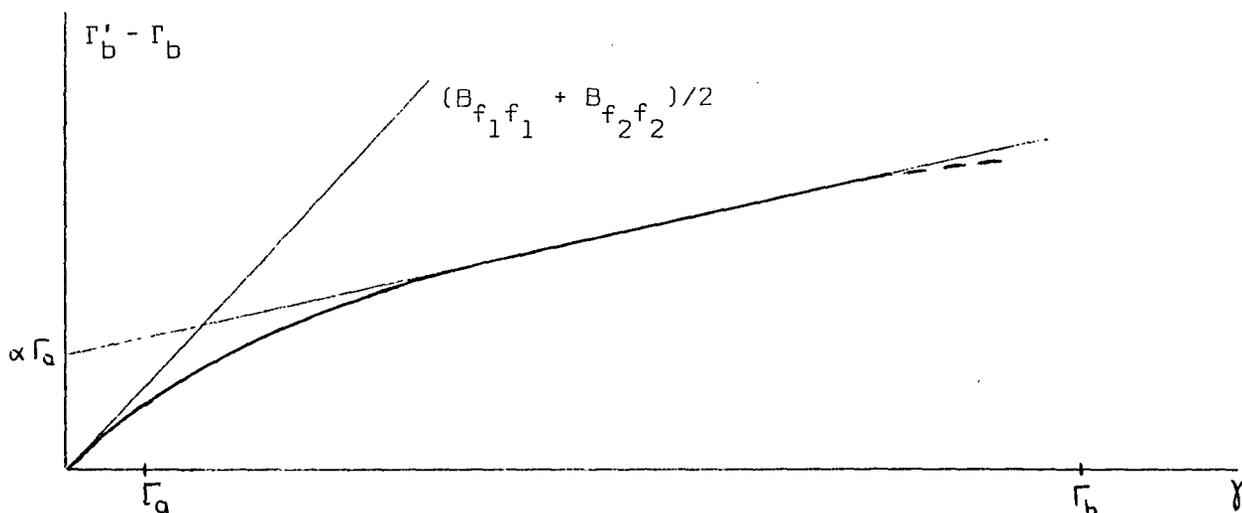
$$(II-44) \quad \rho_c + \rho_c^* = \frac{c \mathcal{A}(\Gamma_b + \Delta\Gamma_1)}{(\Gamma_b + \Delta\Gamma_1 + \Delta\Gamma_2)(\Gamma_b + \Delta\Gamma_1) + \Omega^2}$$

$$(II-45) \quad \rho_c - \rho_c^* = \frac{-i \Omega \mathcal{A}}{(\Gamma_b + \Delta\Gamma_1 + \Delta\Gamma_2)(\Gamma_b + \Delta\Gamma_1) + \Omega^2}$$

Dans le cas d'un laser de polarisation linéaire, on obtient donc une forme d'absorption pour  $\rho_c + \rho_c^*$  et une forme de dispersion pour  $\rho_c - \rho_c^*$ . Ces courbes sont centrées sur  $\Omega=0$ , c'est-à-dire sur le point de croisement de niveaux. Mais contrairement à ce qui se passe lorsque  $\rho_c$  présente une variation en  $1/(\Gamma + i\Omega)$  ( $\beta$ ), les amplitudes des courbes d'absorption et de dispersion ne sont pas égales (note \*); leur largeur commune est :

$$\Gamma'_b = \sqrt{(\Gamma_b + \Delta\Gamma_1 + \Delta\Gamma_2)(\Gamma_b + \Delta\Gamma_1)} \sim \Gamma_b + \Delta\Gamma_1 + \frac{\Delta\Gamma_2}{2}$$

Même lorsque le pompage optique du niveau b est loin d'être saturé ( $\gamma \ll \Gamma_b$ ), on voit que la largeur de la résonance de croisement ne varie pas linéairement avec  $\gamma$ :  $\Delta\Gamma_2$  est le produit de  $\gamma$  par une fonction homographique de  $\gamma$  (Ceci est valable aussi bien pour l'effet Hanle que pour les croisements de niveaux en champ fort). L'allure de la variation de  $\Gamma'_b - \Gamma_b$  avec  $\gamma$  est représentée sur le schéma suivant (ce schéma est tracé dans l'hypothèse où  $\gamma_{ba} \ll \Gamma_b$ ; on peut alors montrer facilement (cf Appendice I) que  $\Delta\Gamma_2 < 0$  et  $|\Delta\Gamma_2| < |\Delta\Gamma_1|$ )



(sur cette figure,  $\alpha\Gamma_a = \Gamma_a \sum_{gMg} \left[ \frac{1}{A_{gg}^2} [D_{f_1 g}^2 \cdot D_{f_2 g}^2] \right]$ )

\*) On retrouve là une caractéristique de l'effet Hanle en pompage optique laser sur une transition  $J=0 \leftrightarrow J=1$  [39]

Lorsque  $\gamma \ll \Gamma_a$ ,  $\Delta\Gamma_2$  est négligeable et  $\Gamma'_b$  tend vers  $\Gamma_b$  avec une pente donnée par  $\Delta\Gamma_1$  : on retrouve le résultat du § (a)

Dans la région intermédiaire où  $\Gamma_a \ll \gamma \ll \Gamma_b$ , on obtient à nouveau une variation linéaire de  $\Gamma'_b$  avec  $\gamma$  (si les ordres de grandeur de  $\Gamma_a$  et  $\Gamma_b$  sont compatibles avec cette condition).

Enfin quand  $\gamma$  devient de l'ordre de  $\Gamma_b$ , notre traitement n'est plus valable, la largeur est dans le cas général (cf § suivant) une fonction assez compliquée de  $\gamma$  (en pointillés sur la figure).

La région linéaire intermédiaire correspond au cas où le pompage optique du niveau inférieur est saturé, alors que l'on est encore loin de la saturation pour le niveau supérieur. La valeur de la durée de vie que l'on obtiendrait en extrapolant à  $\gamma$  nul cette seule région de la courbe comporterait une erreur systématique de l'ordre de  $\Gamma_a$  ; cette valeur n'est correcte que dans la mesure où  $\alpha\Gamma_a$  est négligeable devant la précision expérimentale. En général l'extrapolation doit donc être faite à partir de valeurs de  $\Gamma'_b$  prises dans la région où le pompage optique du niveau inférieur n'est pas saturé.

## II-2e - Forme des croisements de niveaux dans le cas général

Nous ne faisons maintenant plus d'hypothèses sur les ordres de grandeur relatifs de  $\Gamma_a$ ,  $\Gamma_b$  et  $\gamma$ . Nous allons montrer que dans le cas où la polarisation du laser est linéaire, le seul fait que l'on peut négliger toutes les cohérences hyperfines autres que celle qui est résonnante au croisement de niveaux <sup>(note\*)</sup> permet d'obtenir des résultats de la forme de (II-44) et (II-45).

Pour abrégier les notations, désignons par  $\rho_c$  la cohérence  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  ; appelons  $\rho_p$  le vecteur colonne représentant toutes les populations des sous-niveaux hyperfins des niveaux a et b ; soit n sa dimension ( $n = (2I+1)(2J_a+1 + 2J_b+1)$ ). On peut écrire le système, (II 26,27,28) sous la forme matricielle suivante :

-----  
 \*) Nous supposons encore que  $\gamma$  reste nettement inférieur aux fréquences d'évolution des cohérences hyperfines non résonnantes.  
 -----

$$(II-46) \quad \frac{d}{dt} \rho_p = - [\Gamma] \rho_p - \gamma[M] \rho_p + \gamma[A] (\rho_c + \rho_c^*) + [\Lambda]$$

$$(II-47) \quad \frac{d}{dt} \rho_c = - (\Gamma_{CN} + \Delta\Gamma_1 + i\Omega) \rho_c + \gamma[B] \rho_p$$

$$(II-48) \quad \frac{d}{dt} \rho_c^* = - (\Gamma_{CN} + \Delta\Gamma_1 - i\Omega) \rho_c^* + \gamma[B] \rho_p$$

où  $[\Gamma]$  est la matrice ( $n \times n$ ) qui décrit la relaxation des populations.  $[\Gamma]$  prend également en compte le transfert par émission spontanée entre les niveaux  $b$  et  $a$ . Rappelons que dans le cas général  $[\Gamma]$  peut coupler entre elles les populations des divers sous-niveaux hyperfins d'un même niveau ( $a$  ou  $b$ ) [37]

$[\Lambda]$  est le vecteur colonne décrivant le peuplement des sous-niveaux hyperfins de  $a$  et  $b$  par la décharge.

$\Delta\Gamma_1$  est le coefficient d'émission stimulée défini par (II-42)

$\gamma[M]$  est la matrice ( $n \times n$ ) des coefficients de couplage dû au laser entre les populations

$\gamma[A]$  est le vecteur-colonne de dimension  $n$  représentant le couplage par le laser entre les populations et la partie réelle de la cohérence.

$\gamma[B]$  est le vecteur-ligne à  $n$  composantes représentant le couplage par le laser entre la cohérence  $\rho_c$  et les populations.

L'examen des coefficients qui interviennent dans les équations (II-26) (II-27) et (II-28) pour une polarisation linéaire  $\vec{e}$  montre que la matrice représentant l'action du laser dans l'espace de Liouville est symétrique et réelle. Cela entraîne que  $[M]$  est symétrique et réelle et que  $[B] = [A]^+$

En régime stationnaire, le système (II-46,47,48) donne :

$$(II-49) \quad [\Gamma] + \gamma[M] \rho_p = \gamma[A] (\rho_c + \rho_c^*) + \Lambda$$

$$(II-50) \quad (\Gamma_{CN} + \Delta\Gamma_1) (\rho_c + \rho_c^*) = -i\Omega (\rho_c - \rho_c^*) + 2\gamma[B] \rho_p$$

$$(II-51) \quad (\Gamma_{CN} + \Delta\Gamma_1) (\rho_c - \rho_c^*) = -i\Omega (\rho_c + \rho_c^*)$$

Ce système peut être résolu formellement :

$$(II-52) \quad \rho_c + \rho_c^* = \frac{\gamma(\Gamma_{CN} + \Delta\Gamma_1)N}{\Gamma_b^2 + \Omega^2}$$

$$(II-53) \quad \frac{1}{i} (\rho_c - \rho_c^*) = \gamma \frac{-\Omega N}{\Gamma_b'^2 + \Omega^2}$$

$$(II-54) \quad \rho_p = \gamma \left[ [\Gamma] + \gamma [M] \right]^{-1} [A] (\rho_c + \rho_c^*) + \left[ [\Gamma] + \gamma [M] \right]^{-1} [A]$$

avec

$$(II-55) \quad N = 2 [B] \left[ [\Gamma] + \gamma [M] \right]^{-1} [A]$$

$$(II-56) \quad \Gamma_b'^2 = (\Gamma_{CN} + \Delta\Gamma_1) (\Gamma_{CN} + \Delta\Gamma_1 - 2\gamma^2 [B] \left[ [\Gamma] + \gamma [M] \right]^{-1} [A])$$

Nous montrons dans l'Appendice 1 que la matrice  $([\Gamma] + \gamma [M])$  est inversible et que la quantité écrite au second membre de (II-56) est toujours positive.

Pour une intensité laser quelconque, nous obtenons encore les formes de courbe du § II-2d ( $\beta$ ) : la partie réelle de la cohérence présente une résonance de forme d'absorption de Lorentz, la partie imaginaire une résonance en forme de dispersion, les deux courbes ayant des amplitudes différentes par un facteur  $(\Gamma_{CN} + \Delta\Gamma_1)/\Gamma_b'$ .

Ces deux résonances sont centrées au point de croisement de niveaux ( $\Omega = 0$ ) : il n'y a pas de déplacement lié aux transitions réelles (note\*). Leur largeur commune est donnée par (II-56).  $\Gamma_b'^2$  se présente sous la forme d'une fraction rationnelle qui peut comporter des puissances élevées de  $\gamma$ . Cette expression est à rapprocher de la largeur de l'effet Hanle d'un niveau de  $J=1$  excité par un laser multimode sur une transition  $J = 0 \rightarrow J=1$  [39] [40].

Enfin l'expression (II-54) montre que les populations des sous-niveaux hyperfins présentent des résonances de saturation lorentziennes d'absorption de largeur  $\Gamma_b'$ . Remarquons que le premier terme du développement de leurs amplitudes en fonction des puissances de  $\gamma$  est en  $\gamma^2$  (et non

---

\*) Rappelons que nous avons pris comme hypothèse que les effets dus aux transitions virtuelles étaient négligeables.

---

plus en  $\gamma$ , comme l'amplitude de la résonance de cohérence). On retrouve ici encore un résultat analogue à celui de l'étude des saturations au voisinage du champ magnétique nul sur une transition laser  $J = 1 \leftrightarrow J=0$ .

### II-3 Effets liés à la variation avec le champ magnétique des fonctions d'onde et à la courbure des sous-niveaux hyperfins.

Les effets que nous considérons dans ce paragraphe sont complètement indépendants de la nature de l'excitation. Ils sont liés à la structure même de l'hamiltonien décrivant l'évolution de l'atome dans le champ  $H_0$ , en l'absence de laser. Les hypothèses que nous avons faites aux § 1 et 2 sur les valeurs propres et vecteurs propres, -vecteurs propres indépendants du champ magnétique et énergies variant linéairement avec  $H$  dans la région du croisement - correspondent à négliger, dans la région du croisement, les phénomènes d'anticroisement entre sous-niveaux de même  $m_F$ ; elles ne sont en général vérifiées qu'en première approximation. Il en résulte que les courbes de résonance n'ont pas une forme parfaitement symétrique et que leur centre peut être déplacé par rapport au champ  $H_0$  du point de croisement. Nous allons préciser les ordres de grandeurs des variations des fonctions d'ondes avec  $H_0$  et des courbures qui conduisent à des effets non négligeables. Ces paramètres seront introduits phénoménologiquement. Les calculs seront menés dans le cas d'un pompage optique faible (§ 1a et § 2b) avec une polarisation linéaire ( $\langle f_{1m_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{2m_{F_2}} \rangle$  est réel).

#### II-3-a Effets liés à la variation des fonctions d'onde

Lorsque l'on s'éloigne du point de croisement, les vecteurs propres correspondant aux sous-niveaux qui se croisent ne sont plus  $|f_{1m_{F_1}}\rangle_{H_0}$  et  $|f_{2m_{F_2}}\rangle_{H_0}$  mais :

$$(II-57) \quad |f_{1m_{F_1}}\rangle_H \simeq |f_{1m_{F_1}}\rangle_{H_0} + \frac{H-H_0}{\Delta H} \sum_{i \neq 1} \alpha_{1i} |f_{im_{F_1}}\rangle_{H_0}$$

$$(II-58) \quad |f_{2m_{F_2}}\rangle_H \simeq |f_{2m_{F_2}}\rangle_{H_0} + \frac{H-H_0}{\Delta H} \sum_{j \neq 2} \alpha_{2j} |f_{jm_{F_2}}\rangle_{H_0}$$

les  $\alpha_{1i}$  sont les coefficients du développement de  $|f_{1m_{F_1}}\rangle_H$  sur  $|f_{im_{F_1}}\rangle_{H_0}$  lorsque  $H=H_0 + \Delta H$ , où  $\Delta H$  est la demi-largeur du croisement de niveaux ;  $\Delta H = \Gamma/\mu_B (g_{m_{F_1}} - g_{m_{F_2}})$  (cf § 1-a). (la dérivée par rapport à  $H$  d'un vecteur propre  $|f_{m_F}\rangle$  ne se développe que sur les vecteurs de même  $m_F$  et de  $f$  différent puisque l'hamiltonien magnétique est diagonal en  $m_F$ ). La dépendance en  $H$  de la cohérence  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle_H$  est maintenant donnée par l'équation suivante :

$$(II-59) \quad \langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle_H \propto \langle f_{1m_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{2m_{F_2}} \rangle \left[ \frac{1}{\Delta H + i(H-H_0)} + \frac{\delta}{\Delta H} \cdot \frac{H-H_0}{\Delta H + i(H-H_0)} \right]$$

où

$$(II-50) \quad \delta = \frac{1}{\langle f_{1m_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{2m_{F_2}} \rangle} \left( \sum_{i \neq 1} \alpha_{1i} \langle f_{im_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{2m_{F_2}} \rangle + \sum_{j \neq 2} \alpha_{j2} \langle f_{1m_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{jm_{F_2}} \rangle \right)$$

Dans les conditions d'observation où la théorie du § 1-b permettrait de prévoir une forme d'absorption, on obtient donc une somme de courbes de dispersion et d'absorption. La courbe de dispersion est centrée au point de croisement et a la même largeur que l'absorption.

La hauteur relative de la courbe de dispersion est  $\delta$ . Or les termes de la forme  $\langle f_{im_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{2m_{F_2}} \rangle$  sont à priori d'ordre de grandeur comparable à  $\langle f_{1m_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{2m_{F_2}} \rangle$ . L'amplitude relative de la courbe de dispersion est donc du même ordre de grandeur que les coefficients du développement des vecteurs propres  $|f_{1m_{F_1}}\rangle_{H_0+\Delta H}$  et  $|f_{2m_{F_2}}\rangle_{H_0+\Delta H}$  (dans un champ magnétique décalé par rapport à  $H_0$  de la demi-largeur de la résonance) sur les vecteurs propres de même  $m_F$ , dans le champ  $H_0$ ,  $|f_{im_{F_1}}\rangle_{H_0}$  et  $|f_{jm_{F_2}}\rangle_{H_0}$

### II-3-b Effet de la courbure des niveaux d'énergie

Ecrivons que la différence d'énergie entre les deux sous-niveaux  $f_{1m_{F_1}}$  et  $f_{2m_{F_2}}$  comporte un terme quadratique par rapport au champ magnétique :

$$(II-61) \quad E_{f_{1m_{F_1}}} - E_{f_{2m_{F_2}}} = (g_{m_{F_1}} - g_{m_{F_2}}) \mu_B \left[ (H-H_0) + \frac{c}{\Delta H} (H-H_0)^2 \right]$$

$c$  représente l'écart à la variation linéaire sur une plage de champ magnétique égale à la demi-largeur de la courbe de croisement. La variation de  $\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle$  avec le champ magnétique s'écrit alors :

$$\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle = \frac{\langle f_{1m_{F_1}} | \sigma_{exc} | f_{2m_{F_2}} \rangle}{\Delta H + i \left[ (H-H_0) + \frac{c}{\Delta H} (H-H_0)^2 \right]}$$

Nous décomposons  $\frac{1}{\Delta H + i \left[ (H-H_0) + \frac{c}{\Delta H} (H-H_0)^2 \right]}$  en éléments simples, et nous ne conservons que les termes d'ordre le plus bas en  $c$  dans les parties réelle et imaginaire.

On obtient :

$$\frac{1}{\Delta H + i \left( h + \frac{c}{\Delta H} h^2 \right)} = \frac{1}{1 + 2ic} \left( \frac{1}{\Delta H + i(h - c\Delta H)} + \frac{1}{\Delta H - i \left( h + \frac{\Delta H}{c} \right)} \right)$$

on a posé  $h = H - H_0$

Le second terme de (II-51) est fortement non résonnant au voisinage de  $h=0$  puisque  $\Delta H/c \gg \Delta H$ . On peut donc écrire :

$$\langle f_{1m_{F_1}} | \rho | f_{2m_{F_2}} \rangle \sim (1-2ic) \frac{1}{\Delta H + i(H-H_0 - c\Delta H)}$$

La courbure des sous-niveaux hyperfins se traduit donc par un déplacement du centre de la résonance de croisement, égal à  $c\Delta H$ , et par une forme de dispersion additionnelle, d'amplitude relative  $2c$ .

Nous étudierons au (§ V-2) l'incidence des effets décrits en a et b sur la détermination des positions des croisements.

## Chapitre III

ETUDE DU SIGNAL DE RESONANCE MAGNETIQUE EN POMPAGE OPTIQUE LASER.

L'exploitation des données expérimentales fournies par l'étude des croisements entre sous-niveaux hyperfins du  $^{21}\text{Ne}$  nécessite la connaissance des facteurs de Landé dans les niveaux correspondants des isotopes pairs. La plupart de ceux dont nous avons besoin avaient été déterminés par des méthodes de spectroscopie classique, en champ magnétique très fort [46][47][48]; puisque nous disposions d'un moyen très efficace, le laser, pour créer des différences de populations entre les sous-niveaux Zeeman des états en question, il était tentant de reprendre ces mesures par la méthode de double résonance, et de chercher à améliorer la précision. Par ailleurs, il était intéressant de vérifier que ces mesures ne s'étaient pas trouvées entachées d'erreur par suite du découplage de structure fine dans les champs magnétiques utilisés.

● Cependant, ici encore, nous ne nous trouvions pas tout à fait dans les conditions des expériences habituelles de double résonance. Il s'agit en effet de prévoir les formes de courbes de résonance en présence de deux champs : radiofréquence et optique ; c'est le type de problème étudié par de nombreux auteurs, en particulier dans le cadre de la théorie de l'atome "habillé" par les photons de radiofréquence [49]. Mais la plupart de ces études ont été faites dans le cas d'un pompage optique faible, qui ne correspond pas à notre expérience ; du fait du rôle joué par l'émission stimulée, on ne peut plus, dans l'équation d'évolution de la matrice densité du niveau excité, représenter l'effet de l'onde lumineuse par un terme source indépendant de cette matrice densité. Le traitement du problème général dépasse largement le cadre de notre étude et nous nous limiterons ici à mettre en évidence quelques effets nouveaux apparaissant sur la raie de résonance magnétique en pompage optique laser fort (dans les hypothèses exposées au § II 2a) en traitant le champ de radiofréquence

comme un champ tournant à l'ordre de perturbation le plus bas (comme nous nous intéressons au signal statique, il s'agit ici du second ordre [60]). Nous montrerons de plus le rôle important joué dans ce problème par la relaxation due aux collisions interatomiques.

Par ailleurs, il s'est posé un autre problème, lié à la géométrie de notre montage expérimental. Comme on peut le constater au § V-1, on ne peut détecter la résonance magnétique qu'en alignement; de plus, au moins l'une de polarisations d'excitation et de détection est "cohérente" (différente de  $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$  ou  $\pi$ ). Nous allons voir qu'en champ de radiofréquence linéaire les deux caractéristiques précédentes provoquent une légère déformation de la raie de résonance magnétique, due à l'influence de la composante anti-résonnante. Nous étudierons cet effet à la limite des faibles intensités laser (premier ordre en  $\gamma$ , cf § II-2); d'autre part notre but n'étant pas de calculer la forme générale de la raie de résonance magnétique en alignement pour une intensité de champ de radiofréquence quelconque, qui est bien connue [1] [51], mais seulement de donner un ordre de grandeur de la déformation, nous utiliserons encore un développement de perturbation en fonction de l'intensité du champ de radiofréquence (linéaire), en nous limitant à l'ordre le plus bas où cet effet apparaît.

Cette dernière méthode de calcul étant très classique [50][52], c'est par le second point que nous commencerons (§ 2). Nous reprendrons ensuite le calcul de perturbation avec un champ tournant et en traitant le pompage optique laser à l'aide des équations (II-25) (§ 3).

### III-1 Position du problème

Comme au chapitre II, le niveau étudié est le niveau supérieur  $b$  d'une transition optique  $a \leftrightarrow b$ , excitée par un laser. Les moments cinétiques des niveaux sont  $J_a$  et  $J_b$ , leurs facteurs de Landé  $g_a$  et  $g_b$ .

Les atomes sont soumis à un champ magnétique statique  $H_0$  dirigé suivant  $Oz$  et à un champ de radiofréquence linéaire dirigé suivant  $Ox$ ,  $H_1 \cos \omega t$ . Nous appellerons  $\mathcal{H}_{RF}$  l'hamiltonien d'interaction avec le champ de radiofréquence.

D'une manière générale l'équation d'évolution de la matrice densité du niveau étudié  $b^\rho$  peut s'écrire :

$$(III-1) \quad \frac{d}{dt} b^\rho = \left[ \frac{d}{dt} b^\rho \right]_{\text{relax}} + \left[ \frac{d}{dt} b^\rho \right]_{\text{laser}} - i[\mathcal{H}_Z, b^\rho] - i[\mathcal{H}_{\text{RF}}, b^\rho] + [\lambda_b]$$

où  $\left[ \frac{d}{dt} b^\rho \right]_{\text{relax}}$  représente l'effet des collisions interatomiques dans le niveau  $b$ .

$[\lambda_b]$  est la matrice représentant le peuplement du niveau  $b$  par la décharge;  $[\lambda_b]$  est proportionnelle à la matrice unité ; ses coefficients diagonaux sont  $\lambda_b$  (nous adoptons des notations analogues pour le niveau  $a$  :  $[\lambda_a]$  est la matrice de peuplement du niveau  $a$ ).

$\left[ \frac{d}{dt} b^\rho \right]_{\text{laser}}$  est donné par l'équation (II 25 a)

$\mathcal{H}_Z$  est l'hamiltonien Zeeman dans le champ magnétique statique  $H_0$

L'hamiltonien en  $\mathcal{H}_{\text{RF}}$  d'interaction avec le champ de radiofréquence s'écrit

$$(III-2) \quad \mathcal{H}_{\text{RF}} = g_{J_\alpha} \mu_B H_1 \frac{1}{4} (e^{i\omega t} + e^{-i\omega t}) (J_+ + J_-)$$

où  $\alpha = a$  ou  $b$  et  $J_\pm = J_x \pm iJ_y$

Lorsque l'on peut négliger l'effet de la composante anti-résonnante ( $\sigma^-$ ) dans le champ statique  $\vec{H}_0$ , il suffit de considérer l'interaction de l'atome avec le champ tournant  $\frac{H_1}{4} (\vec{\epsilon} e^{-i\omega t} + \vec{\epsilon}^* e^{i\omega t})$  où  $\vec{\epsilon}$  est la polarisation circulaire  $\sigma^+$   $\vec{\epsilon} = \vec{e}_x + i\vec{e}_y$ . Dans ce cas l'hamiltonien d'interaction avec le champ de radiofréquence s'écrit :

$$(III-3) \quad \mathcal{H}_{\text{RF}} = g_{J_\alpha} \mu_B H_1 \frac{1}{4} (J_+ e^{-i\omega t} + J_- e^{i\omega t})$$

Les expressions (II-2) et (III-3) montrent que l'hamiltonien  $\mathcal{H}_{\text{RF}}$  ne couple pas les grandeurs tensorielles d'ordre  $k$  différent ; il sera donc commode dans la suite d'utiliser le développement de la matrice densité sur la base des opérateurs tensoriels irréductibles

$$\rho = \sum_{k,q} \rho_q^k T_q^k$$

Ceci nous permettra de plus de traiter l'effet des collisions interatomiques

(cf § II 1c) ; nous noterons  $1/\Gamma_\alpha(k)$  le temps de relaxation des observables tensorielles d'ordre  $k$  du niveau  $\alpha$ .

III-2 Effet de la composante "anti-résonnante" du champ de radiofréquence sur la forme de raie de résonance magnétique en alignement.

Comme nous l'avons indiqué plus haut, nous nous intéressons ici au signal statique de résonance magnétique en alignement, dans le cas d'un pompage optique faible.

Nous ne garderons donc dans l'équation (III-1) que les termes d'ordre 1 en  $\gamma = 1/T_p$  (défini en II-24).

A l'ordre zéro en  $\gamma$ , le seul terme source dans (III-1) est le terme de décharge, qui ne crée que de la population. La solution stationnaire de (III-1) à cet ordre s'écrit donc immédiatement :

$$b^\rho(\gamma=0) = n_b I_b \quad \text{où} \quad n_b = \frac{\lambda_b}{\Gamma_b(0)} \quad \text{et } I_b \text{ est la matrice unité dans le niveau } b.$$

par ailleurs on a de même :

$$a^\rho(\gamma=0) = n_a I_a \quad \text{où} \quad n_a = \frac{\lambda_a}{\Gamma_a(0)}$$

Calculons maintenant le terme  $[\frac{d}{dt} b^\rho]_{\text{laser}}$  à l'ordre 1 en  $\gamma$ . Nous utilisons pour cela (II-25a).

$$(III-4) \quad \left[ \frac{d}{dt} b^\rho \right]_{\text{laser}} = \gamma (n_a - n_b) (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D})$$

On voit que si on se limite à l'ordre 1 en  $\gamma$ , on peut mettre  $[\frac{d}{dt} b^\rho]_{\text{laser}}$  sous la forme d'un terme source indépendant de  $b^\rho$  et de  $a^\rho$ . Posons :

$$(III-5) \quad \left[ \frac{d}{dt} b^\rho \right]_{\text{laser}} = \gamma b^\sigma$$

Dans la suite de ce paragraphe, seul intervient le niveau  $b$  ; nous omettons donc désormais l'indice  $b$ .

Projetons l'équation (III-1) sur la base d'opérateurs tensoriels irréductibles ; compte tenu de (III-4) et (III-5) , l'évolution de la composante  $\rho_q^k$  est décrite par l'équation suivante :

$$(III-6) \quad \frac{d}{dt} \rho_q^k = \gamma \sigma_q^k - (\Gamma(k) + iq\omega_0) \rho_q^k + \delta_{k0} \delta_{q0} \sqrt{2J+1} \lambda - \frac{i\omega_1}{2} \cos \omega t \left[ \sqrt{k(k+1)-q(q+1)} \rho_{q+1}^k + \sqrt{k(k+1)-q(q-1)} \rho_{q-1}^k \right]$$

où on a posé :

$$(III-7) \quad \omega_0 = \mu_B g_J H_0$$

$$(III-8) \quad \omega_1 = \mu_B g_J H_1$$

En ce qui concerne les composantes de l'alignement , nous pouvons donc écrire :

$$(III-9) \quad \frac{d}{dt} \rho_0^2 = \gamma \sigma_0^2 - \Gamma(2) \rho_0^2 - i\omega_1 \frac{\sqrt{6}}{2} \cos \omega t (\rho_1^2 + \rho_{-1}^2)$$

$$(III-10) \quad \frac{d}{dt} \rho_{\pm 1}^2 = \gamma \sigma_{\pm 1}^2 - (\Gamma(2) \pm i\omega_0) \rho_{\pm 1}^2 - i\omega_1 \frac{1}{2} \cos \omega t (\sqrt{6} \rho_0^2 + 2 \rho_{\pm 2}^2)$$

$$(III-11) \quad \frac{d}{dt} \rho_{\pm 2}^2 = \gamma \sigma_{\pm 2}^2 - (\Gamma(2) \pm 2i\omega_0) \rho_{\pm 2}^2 - i\omega_1 \cos \omega t \rho_{\pm 1}^2$$

Nous résolvons ce système par la méthode d'itération due à N. BLOEMBERGEN [50], en distinguant deux cas correspondant aux situations expérimentales que nous avons étudiées.

a- pompage optique "longitudinal"  $\sigma^+$  ou  $\sigma^-$  : la polarisation du laser est circulaire et la direction de propagation est parallèle au champ magnétique ; on a alors  $\sigma_q^2 = 0$  si  $q \neq 0$

b- pompage optique "transversal"  $\sigma$  : la polarisation du laser est linéaire , perpendiculaire au champ magnétique ; on a alors  $\sigma_0^2 \neq 0$  et  $\sigma_{\pm 2}^2 \neq 0$

Dans les deux cas ,  $\sigma_{\pm 1}^2 = 0$

### III-2a- Pompage optique longitudinal

A l'ordre 0 en  $\omega_1$ , seul l'alignement longitudinal est différent de 0 ; la solution stationnaire de (II-9) est alors :

$$(III-12) \quad {}^{(0)}\rho_0^2 = \frac{\gamma}{\Gamma(2)} \sigma_0^2$$

A l'ordre 1 en  $\omega_1$ , la solution stationnaire de (II-10) s'écrit :

$$(III-13) \quad {}^{(1)}\rho_{\pm 1}^2 = \frac{-i\sqrt{6}}{4} \frac{\gamma}{\Gamma(2)} \sigma_0^2 \omega_1 \left[ \frac{e^{i\omega t}}{\Gamma(2) \pm i(\omega_0 \mp \omega)} + \frac{e^{-i\omega t}}{\Gamma(2) \pm i(\omega_0 \mp \omega)} \right]$$

Au second ordre de radiofréquence, on obtient des termes modulés à  $2\omega$  et des termes statiques. Seuls les termes statiques nous intéressent ici ; ce sont  ${}^{(2)}\rho_0^2$  et  ${}^{(2)}\rho_{\pm 2}^2$ . On a :

$$(III-14) \quad {}^{(2)}\rho_0^2 = -\frac{3}{4} \frac{\gamma}{\Gamma(2)} \sigma_0^2 \omega_1^2 \frac{1}{(\Gamma(2))^2 + (\omega - \omega_0)^2}$$

$$(III-15) \quad {}^{(2)}\rho_{+2}^2 + {}^{(2)}\rho_{-2}^2 = \frac{\sqrt{6}}{8} \frac{\gamma}{\Gamma(2)} \sigma_0^2 \frac{\omega_1^2}{\omega_0} \frac{\omega_0 - \omega}{(\Gamma(2))^2 + (\omega - \omega_0)^2}$$

Tenant compte du fait que  $\omega$  et  $\omega_0$  sont grands devant  $\Gamma(2)$ , on a négligé les termes d'ordre supérieur à 1 en  $\Gamma(2)/\omega_0$  dans (III-15).

En pompage longitudinal, nous créons donc une composante transversale de l'alignement ; on peut vérifier que cette composante transversale n'apparaît pas en champ de radiofréquence tournant : elle est liée à la présence de la composante anti-résonnante du champ de radiofréquence. Il est usuel (cf chap. V) de détecter la résonance magnétique en alignement sur la différence des signaux de fluorescence obtenus en polarisation  $\pi$  et  $\sigma$  dans une même direction : le signal est donc sensible dans ce cas à  $\rho_0^2$  et  $\rho_{+2}^2 + \rho_{-2}^2$ . Il se superpose alors à la courbe d'absorption une courbe de dispersion de même largeur et même centre que la courbe d'absorption et d'amplitude relative proportionnelle à  $\Gamma(2)/\omega$  : la dissy-

métrie ainsi introduite dans la courbe de résonance magnétique tend à disparaître lorsque la fréquence de résonance devient grande ( $\omega \gg \Gamma$ )

### III-2b Pompage optique transversal $\sigma$

A l'ordre 0 en  $\omega_1$ , les grandeurs tensorielles créées par le laser sont dans ce cas  $\sigma_0^2$  et  $\sigma_{\pm 2}^2$ . Des considérations de symétrie permettent de montrer [52] qu'en pompage  $\sigma$  on a :

$$(III-16) \quad \sigma_{+2}^2 = \sigma_{-2}^2 = -\sqrt{\frac{3}{2}} \sigma_0^2$$

Par la même méthode que ci-dessus, on obtient, au second ordre en  $\omega_1$ , les résultats suivants

$$(III-17) \quad \rho_0^{(2)2} = -\frac{3}{4} \frac{\gamma}{\Gamma(2)} \sigma_0^2 \frac{\omega_1^2}{(\Gamma(2))^2 + (\omega - \omega_0)^2} + \frac{\sqrt{6}}{8} \frac{\gamma}{\Gamma(2)} \sigma_2^2 \frac{\omega_1^2}{\omega} \frac{\omega_0 - \omega}{(\Gamma(2))^2 + (\omega - \omega_0)^2}$$

$$(III-18) \quad \rho_{+2}^{(2)2} \rho_{-2}^{(2)2} = \frac{\sqrt{6}}{8} \frac{\gamma}{\Gamma(2)} \sigma_0^2 \frac{\omega_1^2}{\omega_0} \frac{\omega_0 - \omega}{(\Gamma(2))^2 + (\omega - \omega_0)^2}$$

Comme précédemment, nous avons négligé les termes d'ordre supérieur à 1 en  $\Gamma(2)/\omega$ .

On voit ici que même lorsque la détection est de polarisation incohérente (sensible à  $\rho_0^2$  uniquement), la courbe de résonance magnétique est une somme d'absorption et de dispersion. De même que ci-dessus, cet effet est lié à la composante anti-résonnante du champ de radiofréquence.

Calculons le rapport D/A des amplitudes des formes d'absorption et de dispersion dans (III-17); compte tenu de (III-16), on obtient

$$(III-19) \quad \frac{D}{A} = \frac{1}{2} \frac{\Gamma(2)}{\omega}$$

Expérimentalement, on peut constater que la présence d'une courbe de dispersion de faible amplitude superposée à l'absorption conduit lors du dépouillement des enregistrements (cf § V-2-b) à une erreur sur la position du centre de la courbe; le rapport de ce déplacement apparent à la largeur de la courbe est de l'ordre du rapport de l'amplitude de la courbe

de dispersion à celle de l'absorption. Ici nous obtenons donc un déplacement apparent de la courbe d'une quantité  $(\Gamma(2))^2/2\omega$ . Ce déplacement est indépendant de  $\omega_1$ , et tend vers zéro lorsque  $\omega$  devient grand. On peut comparer son ordre de grandeur à celui de l'effet Bloch Siegert,  $\omega_1^2/16\omega$  [53]. Si, comme nous l'avons supposé dans ce calcul de perturbation (et comme c'est le cas dans nos expériences)  $\omega_1 < \Gamma$ , on voit que le déplacement apparent que nous venons de calculer est supérieur au déplacement Bloch-Siegert.

On obtient un résultat analogue dans le cas de la raie de résonance magnétique en pompage longitudinal, détectée en polarisation cohérente.

#### Remarque

Le terme que nous venons de calculer n'apparaît pas sur l'orientation ; en effet, l'examen de l'équation (III-6) montre que partant de grandeurs statiques de la forme  $\rho_q^k$ , on obtient aux ordres de perturbation pairs des termes  $\rho_q^k$ , modulés à  $2n\omega$  (où  $n$  est entier) et de  $q'$  tel que  $q-q' = 2m$  ( $m$  entier), aux ordres impairs de perturbation des termes modulés à  $(2n+1)\omega$  et de  $q'$  tel que  $q-q' = 2m+1$ . Au second ordre de perturbation le champ de radiofréquence ne peut donc pas créer d'orientation transversale à partir d'orientation longitudinale puisque cela nécessiterait  $q-q' = 1$ .

### III-3 La résonance magnétique en présence d'un pompage optique laser fort

Au paragraphe précédent, nous avons supposé que le pompage optique était suffisamment faible pour être décrit seulement par le terme du premier ordre en  $\gamma$  dans la solution du système (II-25). Nous abandonnons maintenant cette hypothèse, tout en restant cependant dans les conditions exposées au § II-2a. Nous supposons de plus que  $\gamma$  reste toujours faible devant les fréquences d'évolution des cohérences Zeeman dans le champ magnétique  $H_0$ .

Nous ne pouvons maintenant plus représenter l'interaction avec le laser par un terme source ne dépendant que des propriétés géométriques

de l'excitation lumineuse ; l'absorption et l'émission stimulée introduisent un couplage entre les diverses composantes de la matrice densité à l'intérieur d'un même niveau d'une part, entre matrices densité des deux niveaux d'autre part . Pour étudier l'effet de ces couplages sur la résonance magnétique de l'un des niveaux (nous prendrons le niveau supérieur b de la transition laser, ce qui correspond à notre situation expérimentale), nous présentons ici une résolution de l'équation (III-1) valable à tous les ordres en  $\gamma$  , tout en traitant l'interaction avec le champ de radiofréquence au second ordre de perturbation en  $H_1$  . Pour simplifier, nous ne considérerons que la composante circulaire du champ de radiofréquence résonnante dans le champ  $H_0$  .

Le schéma du calcul est le suivant : en l'absence de champ de radiofréquence , on résout le système d'équations déduit de (II-25) donnant les diverses composantes tensorielles  ${}^{(0)}\rho_q^k$  de la matrice densité créées par le laser. Aux ordres suivants en  $H_1$  , les équations d'évolution des composantes  ${}^{(n)}\rho_q^k$  de la matrice densité sont de la forme :

$$(III-20) \quad \frac{d}{dt} {}^{(n)}\rho_b^k = - (\Gamma_b(k) + iq\omega_b) {}^{(n)}\rho_b^k + \gamma \sum_{\substack{\alpha=a,b \\ k'q'}} {}_{ba} A^{kk'} {}_{\alpha} \rho_{q'}^{(n)k'} \\ - i \left[ \mathcal{H}_{RF}^{(n-1)} \right]_q^k + \delta_{k_0} \delta_{q_0} \sqrt{2J_b+1} \lambda_b \delta_{(n),0}$$

Nous avons posé  $\omega_b = g_J \mu_B H_0$

Le terme  $\gamma {}_{ba} A^{kk'} {}_{\alpha} \rho_{q'}^{(n)k'}$  représente le couplage par le laser entre

${}_{b} \rho_q^k$  et  ${}_{\alpha} \rho_{q'}^{k'}$  pris au même ordre de perturbation par rapport à  $H_1$  ( ${}_{ba} A^{kk'}$  est un coefficient purement géométrique, calculable à partir des équations (II-25)). Le terme qui décrit l'interaction avec le champ de radiofréquence fait par contre intervenir  ${}_{b} \rho_{q'}^{k'}$  à l'ordre précédent par rapport à  $H_1$  .

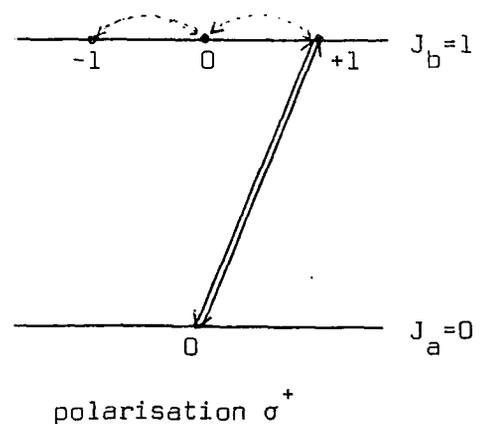
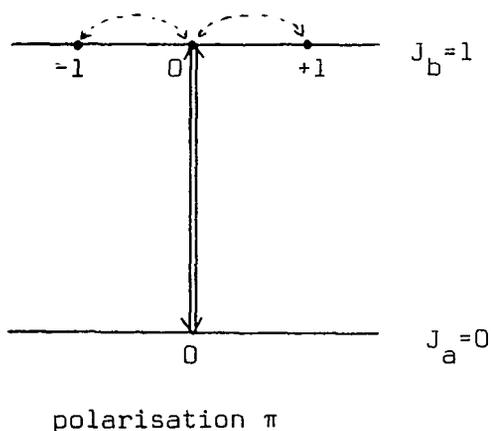
On conçoit que le nombre de composantes tensorielles mises en jeu augmente très rapidement avec les moments cinétiques des niveaux a et b. Nous nous contenterons donc de mettre en évidence les termes nouveaux sur les cas très simples suivants :

- résonance magnétique sur le niveau  $J=1$  d'une transition  $J=0 \leftrightarrow J=1$  excitée par un pompage optique de polarisation linéaire  $\pi$  d'une part, circulaire  $\sigma^\pm$  d'autre part.
- résonance magnétique sur l'un des niveaux d'une transition  $J=1 \leftrightarrow J=1$  excitée par un pompage optique de polarisation  $\pi$ .

Rappelons que l'excitation de polarisation circulaire  $\sigma^+$  ou  $\sigma^-$ , présentant la symétrie de révolution autour de Oz ne peut coupler que des grandeurs tensorielles  $T_q^k$  de même q. L'excitation de polarisation  $\pi$  possède en plus de la propriété précédente l'invariance par renversement de temps ; cela entraîne [54] que le couplage n'est possible qu'entre tenseurs dont les ordres k diffèrent de  $2n$  (n entier).

### III-3a Transition $J=0 \leftrightarrow J=1$

Dans le cas d'un pompage optique entre un niveau de  $J=0$  et un niveau de  $J=1$ , les transitions que peut induire un laser de polarisation  $\pi$  ou  $\sigma^+$  entre sous-niveaux Zeeman sont représentées sur les diagrammes suivants par les flèches doubles ; les transitions induites par le champ de radiofréquence sont représentées en pointillés.



Dégageons tout d'abord quelques propriétés de l'excitation laser dans ces deux cas. Dans le niveau b seule la population  $\rho_{mm}$  de l'un des sous-niveaux Zeeman est modifiée par le laser ( $m=0$  pour le laser de polarisation  $\pi$ ,  $m = +1$  pour le laser de polarisation  $\sigma^+$ ) ; nous pouvons, d'après (II-25), écrire dès à présent les relations suivantes, valables indépendamment de l'intensité du champ de radiofréquence.

$$(III-21) \quad \left[ \frac{d}{dt} \rho_{mm} \right]_{\text{laser}} = \gamma a^{\rho} - \gamma \rho_{mm}$$

$$(III-22) \quad \left[ \frac{d}{dt} a^{\rho} \right]_{\text{laser}} = - \left[ \frac{d}{dt} \rho_{mm} \right]_{\text{laser}}$$

$$(III-23) \quad \left[ \frac{d}{dt} \rho_{m'm'} \right]_{\text{laser}} = 0 \quad \begin{array}{l} (m' \neq 0 \text{ en pompage } \pi \\ m' \neq 1 \text{ en pompage } \sigma^+) \end{array}$$

Nous verrons que même dans ces cas simples, il est commode d'utiliser la décomposition de la matrice densité sur les opérateurs tensoriels irréductibles. Nous projetons donc les relations (III-21, 22, 23) sur la base des  $b_{Tq}^k$  et  $a_{Tq}^k$ .

On sait (voir par exemple ref [37] eq. I-3) que

$$(III-24) \quad J_{Tq}^k = \sum_{m,m'} (-)^{J-m'} \langle J J m - m' | kq \rangle | Jm \rangle \langle Jm' |$$

(III-23) nous permet alors d'écrire :

$$(III-25) \quad \left[ \frac{d}{dt} \rho_{00}^k \right]_{\text{laser}} = (-)^{1-m} \langle 1 \ 1 \ m - m \ | \ k \ 0 \rangle \left[ \frac{d}{dt} \rho_{mm} \right]_{\text{laser}}$$

d'où lorsque  $m=0$  (polarisation  $\pi$ )

$$(III-26) \quad -\sqrt{2} \left[ \frac{d}{dt} \rho_{00}^0 \right]_{\text{laser}} = \left[ \frac{d}{dt} \rho_{00}^2 \right]_{\text{laser}}$$

$$\left[ \frac{d}{dt} \rho_{00}^1 \right]_{\text{laser}} = 0$$

Lorsque  $m=1$  (polarisation  $\sigma^+$ )

$$(III-27) \quad \sqrt{3} \left[ \frac{d}{dt} \rho_{00}^0 \right]_{\text{laser}} = \sqrt{2} \left[ \frac{d}{dt} \rho_{00}^1 \right]_{\text{laser}} = \sqrt{6} \left[ \frac{d}{dt} \rho_{00}^2 \right]_{\text{laser}}$$

Utilisant maintenant (III-22), nous pouvons écrire que

$$(III-28) \quad \left[ \frac{d}{dt} \rho_{nn} \right]_{\text{laser}} + \sum_{n=-1,0,1} \left[ \frac{d}{dt} \rho_{nn} \right]_{\text{laser}} = 0$$

La somme des populations des niveaux a et b ne varie pas sous l'action du laser. Dans la base des opérateurs tensoriels irréductibles cette relation prend la forme :

$$(III-29) \quad \left[ \frac{d}{dt} \left( \rho_{a0}^0 + \sqrt{3} \rho_{b0}^0 \right) \right]_{\text{laser}} = 0$$

Par ailleurs, nous avons vu que l'hamiltonien  $\mathcal{H}_{\text{RF}}$  n'agit pas sur les populations. L'équation d'évolution de la somme des populations des niveaux a et b est donc

$$(III-30) \quad \frac{d}{dt} \left( \rho_{a0}^0 + \sqrt{3} \rho_{b0}^0 \right) = -\Gamma_a(0) \rho_{a0}^0 + \lambda_a + \sqrt{3} \gamma_{ba} \left[ \rho_{b0}^0 - \sqrt{3} \frac{\lambda_b}{\Gamma_b} \right] - \sqrt{3} \Gamma_b(0) \rho_{b0}^0 + 3\lambda_b$$

où  $\sqrt{3} \gamma_{ba} \left[ \rho_{b0}^0 - \sqrt{3} \frac{\lambda_b}{\Gamma_b} \right]$  est le terme de transfert par émission spontanée du niveau b au niveau a [55] ( $\gamma_{ba}$  est la probabilité de transition  $b \rightarrow a$  par émission spontanée). Pour nous conformer aux notations de publications antérieures [41][56] nous considérons que l'effet du transfert par émission spontanée en l'absence de laser est inclus dans le terme  $\lambda_a$ ; nous n'avons donc à tenir compte dans (III-30) que de l'effet supplémentaire du transfert dû à la modification  $\left( \rho_{b0}^0 - \sqrt{3} \frac{\lambda_b}{\Gamma_b} \right)$  de la population du niveau b par le laser.

Posons :

$$(III-31) \quad \Gamma_a^*(0) = \Gamma_a(0) \left( 1 - \frac{\gamma_{ba}}{\Gamma_b(0)} \right)^{-1}$$

La solution stationnaire de (III-30) donne :

$$(III-32) \quad -\Gamma_a^*(0) ({}_a\rho_0^0 - n_a) = \sqrt{3} \Gamma_b(0) ({}_b\rho_0^0 - \sqrt{3} n_b)$$

où  $n_a = \lambda_a / \Gamma_a(0)$  et  $n_b = \lambda_b / \Gamma_b(0)$ .

Quel que soit le champ de radiofréquence, le laser induit dans les niveaux a et b des modifications de populations proportionnelles.

Enfin l'équation (III-21) nous permet de calculer les  $\left[ \frac{d}{dt} \rho_0^k \right]_{\text{laser}}$  ; il nous suffit de le faire pour une seule des composantes  $\rho_0^k$ , les variations des autres composantes avec le laser s'en déduisant par (III-27) - (III-28) et (III-32).

Pour l'alignement longitudinal, nous obtenons :

en polarisation  $\pi$  ( $m=0$ )

$$(III-33) \quad \left[ \frac{d}{dt} {}_b\rho_0^2 \right]_{\text{laser}} = -\sqrt{\frac{2}{3}} \gamma \left[ {}_a\rho_0^0 - \frac{1}{\sqrt{3}} {}_b\rho_0^0 + \sqrt{\frac{2}{3}} {}_b\rho_0^2 \right]$$

en polarisation  $\sigma^+$  ( $m=1$ )

$$(III-34) \quad \left[ \frac{d}{dt} {}_b\rho_0^2 \right]_{\text{laser}} = \frac{1}{\sqrt{6}} \gamma \left[ {}_a\rho_0^0 - \frac{1}{\sqrt{3}} {}_b\rho_0^0 - \frac{1}{\sqrt{2}} {}_b\rho_0^1 - \frac{1}{\sqrt{6}} {}_b\rho_0^2 \right]$$

On retrouve bien le fait que le laser de polarisation  $\pi$  ne couple pas orientation et alignement. Ce cas est donc beaucoup plus simple que celui de la polarisation  $\sigma^+$ , où comme nous le verrons, orientation et alignement sont couplés à chaque ordre de perturbation en  $H_1$ .

Nous allons maintenant traiter séparément les deux cas .

### $\alpha)$ *Pompage optique en polarisation $\pi$*

#### (i) ordre zéro en $H_1$

A l'ordre 0 en  $H_1$ , la seule grandeur d'ordre tensoriel non nul

créée dans le niveau  $b$  est, comme nous l'avons vu, l'alignement longitudinal  $(0) \rho_0^2$ ; les équations (III-26), (III-32) et (III-33) permettraient de calculer  $(0) \rho_0^2$  en fonction de  $n_a$ ,  $n_b$  et  $\gamma$ . Comme nous nous intéressons plutôt ici à la forme de la raie de résonance magnétique qu'à son amplitude, nous ne calculerons pas explicitement  $(0) \rho_0^2$ .

(ii) ordre 1 en  $H_1$

De même qu'au § 2-a, seuls  $(1) \rho_{\pm 1}^2$  et  $(1) \rho_{\mp 1}^2$  ont un terme source non nul au premier ordre en  $H_1$ . Par ailleurs, par suite des propriétés de l'excitation laser  $\pi$ ,  $(1) \rho_{+1}^2$  et  $(1) \rho_{-1}^2$  ne sont couplés qu'à eux-mêmes par le laser. Leur équation d'évolution s'écrit :

$$(III-35) \quad \frac{d}{dt} (1) \rho_{\pm 1}^2 = - (\Gamma_b(2) \pm i\omega_b) (1) \rho_{\pm 1}^2 + \gamma_{bb} A_{\pm 1 \pm 1}^2 (1) \rho_{\pm 1}^2 - i \omega_{1b} \frac{\sqrt{6}}{4} (0) \rho_0^2 e^{\mp i\omega t}$$

où l'on a posé :

$$(III-36) \quad \omega_{1b} = g_J \mu_B H_1$$

Rappelons que  $\omega_b = g_J \mu_B H_0$

Les coefficients  $\gamma_{bb} A_{\pm 1 \pm 1}^2$  peuvent être déterminés soit à partir du traitement de M. DUCLOY (eq (I-54) de la ref [39]) soit directement à partir du système (II-25). On obtient :

$$\gamma_{bb} A_{1 1}^2 = \gamma_{bb} A_{-1 -1}^2 = - \frac{1}{2}$$

Au premier ordre en  $\omega_1$  on peut finalement écrire :

$$(III-37) \quad \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho_{\pm 1}} \end{pmatrix}^2 = - \left( \Gamma + \frac{\gamma}{2} \pm i\omega_b \right) \begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho_{\pm 1}} \end{pmatrix}^2 - i\omega_b \frac{\sqrt{6}}{4} \begin{pmatrix} 0 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^2 e^{\mp i\omega t}$$

La solution stationnaire pour  $\begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho_{\pm 1}} \end{pmatrix}^2$ , modulée à  $e^{\mp i\omega t}$  est :

$$(III-38) \quad \begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho_{\pm 1}} \end{pmatrix}^2 = - i\omega_b \frac{\sqrt{6}}{4} \begin{pmatrix} 0 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^2 \frac{e^{\mp i\omega t}}{\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{2} \pm i(\omega_b - \omega)}$$

(iii) second ordre en  $H_1$

Au second ordre en  $H_1$ , on a à résoudre le système suivant :

$$(III-39) \quad \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} 2 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^2 = - \Gamma_b(2) \begin{pmatrix} 2 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^2 - \sqrt{\frac{2}{3}} \gamma \left[ \begin{pmatrix} 2 \\ a^{\rho_0} \end{pmatrix}^0 - \frac{1}{\sqrt{3}} \begin{pmatrix} 2 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^0 + \sqrt{\frac{2}{3}} \begin{pmatrix} 2 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^2 \right] \\ - i\omega_b \frac{\sqrt{6}}{4} \left[ \begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho_{+1}} \end{pmatrix}^2 e^{i\omega t} + \begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho_{-1}} \end{pmatrix}^2 e^{-i\omega t} \right]$$

$$(III-40) \quad \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} 2 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^0 = - \Gamma_b(0) \begin{pmatrix} 2 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^0 + \frac{1}{\sqrt{3}} \gamma \left[ \begin{pmatrix} 2 \\ a^{\rho_0} \end{pmatrix}^0 - \frac{1}{\sqrt{3}} \begin{pmatrix} 2 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^0 + \sqrt{\frac{2}{3}} \begin{pmatrix} 2 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^2 \right]$$

$$(III-41) \quad \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} 2 \\ a^{\rho_0} \end{pmatrix}^0 = - \Gamma_a(0) \begin{pmatrix} 2 \\ a^{\rho_0} \end{pmatrix}^0 - \sqrt{3} \left[ \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} 2 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^0 \right]_{\text{laser}} + \sqrt{3} \gamma_{ba} \begin{pmatrix} 2 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^0$$

Nous avons utilisé les expressions de  $\left[ \frac{d}{dt} \rho_0^k \right]_{\text{laser}}$  obtenues plus haut.

Lorsque l'on prend la solution stationnaire de ces équations, on obtient :

$$(III-42) \quad \Gamma_b(2) \begin{pmatrix} 2 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^2 = - \sqrt{\frac{2}{3}} \gamma \left[ \begin{pmatrix} 2 \\ a^{\rho_0} \end{pmatrix}^0 - \frac{1}{\sqrt{3}} \begin{pmatrix} 2 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^0 + \sqrt{\frac{2}{3}} \begin{pmatrix} 2 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^2 \right] \\ - \frac{3}{4} \omega_b^2 \begin{pmatrix} 0 \\ b^{\rho_0} \end{pmatrix}^2 \frac{\Gamma_b(2)}{(\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{2})^2 + (\omega_b - \omega)^2}$$

$$(III-43) \quad \Gamma_b(0) \quad {}^{(2)}_{b\rho_0} = + \frac{1}{\sqrt{3}} \gamma \left[ {}^{(2)}_{a\rho_0} - \frac{1}{\sqrt{3}} {}^{(2)}_{b\rho_0} + \sqrt{\frac{2}{3}} {}^{(2)}_{b\rho_0} \right]$$

$$(III-44) \quad -\Gamma_a^*(0) \quad {}^{(2)}_{a\rho_0} = \sqrt{3} \Gamma_b(0) \quad {}^{(2)}_{b\rho_0}$$

La résolution de ces équations conduit aux expressions suivantes :

$$(III-45) \quad {}^{(2)}_{b\rho_0} = - \frac{1}{\Gamma_b(2) + \frac{2}{3} \frac{\gamma}{1+\gamma\tau}} \quad \frac{3}{4} \omega_{1b}^2 \quad {}^{(0)}_{b\rho_0} \quad \frac{\Gamma_b(2)}{(\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{2})^2 + (\omega_b - \omega)^2}$$

$$(III-46) \quad {}^{(2)}_{b\rho_0} = \frac{\sqrt{2}}{3} \frac{\gamma}{\Gamma_b(0)} \frac{1}{1+\gamma\tau} \quad {}^{(2)}_{b\rho_0}$$

$$(III-47) \quad {}^{(2)}_{a\rho_0} = -\sqrt{\frac{2}{3}} \frac{\gamma}{\Gamma_a^*(0)} \frac{1}{1+\gamma\tau} \quad {}^{(2)}_{a\rho_0}$$

où l'on a posé :

$$\tau = \frac{1}{3\Gamma_b(0)} + \frac{1}{\Gamma_a^*(0)}$$

L'expression (III-45) montre qu'à la limite des faibles intensités de radio-fréquence, la résonance est lorentzienne, centrée en  $\omega_b = \omega$  et de largeur  $\Gamma_b(2) + \gamma/2$  : la courbe de résonance magnétique, contrairement à l'effet Hanle [39] s'élargit linéairement en fonction de l'intensité du laser.

On peut expliquer cette différence de comportement en remarquant que le laser de polarisation  $\pi$  ne couple les cohérences  $\rho_{\pm 1}^2$  à aucune autre composante de la matrice densité : l'effet du laser est simplement d'induire une relaxation supplémentaire de ces cohérences. Au contraire, dans le cas de l'effet Hanle (en pompage optique  $\sigma$ ) le laser couple l'alignement transversal  $\rho_{\pm 2}^2$  aux populations ; au terme de disparition de la cohérence par émission stimulée s'ajoute donc un terme de "restitution" provenant du couplage avec les populations : l'élargissement par le laser de la courbe d'effet Hanle est moins important que ne le laisserait prévoir

le seul terme de relaxation par émission stimulée.

Les expressions (III-46) et (III-47) montrent par ailleurs que les populations des deux niveaux présentent maintenant une résonance de saturation de même largeur et même centre que la résonance observable sur l'alignement longitudinal. Ces résonances sont dues au couplage de l'alignement longitudinal  $\rho_0^{(2)}$  avec les populations.

### β) Pompage optique en polarisation $\sigma^+$

#### (i) ordre zéro en $H_1$

A l'ordre 0 en  $H_1$ , le laser crée à la fois de l'alignement et de l'orientation. Pour calculer la forme de la courbe de résonance, il nous suffit de connaître le rapport entre  $\rho_0^{(0)1}$  et  $\rho_0^{(0)2}$ .

Or à l'état stationnaire nous avons

$$\Gamma_b^{(1)} \rho_0^{(0)1} = \left[ \frac{d}{dt} \rho_0^{(0)1} \right]_{\text{laser}}$$

$$\Gamma_b^{(2)} \rho_0^{(0)2} = \left[ \frac{d}{dt} \rho_0^{(0)2} \right]_{\text{laser}}$$

La relation (III-27) nous donne alors :

$$(III-48) \quad \rho_0^{(0)1} = \sqrt{3} \frac{\Gamma_b^{(2)}}{\Gamma_b^{(1)}} \rho_0^{(0)2}$$

#### (ii) premier ordre en $H_1$

Au premier ordre en  $H_1$  les composantes  $\rho_{\pm 1}^{(1)}$  et  $\rho_{\pm 1}^{(2)}$  ont maintenant des termes sources non nuls. De plus  $\rho_1^{(2)}$  et  $\rho_1^{(1)}$  d'une part

$b^{\rho-1}_2$  et  $b^{\rho-1}_1$  d'autre part sont couplés par le laser. On doit donc résoudre le système

$$(III-49) \quad \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho 2}_1 \end{pmatrix} = -(\Gamma_b(2) + i\omega_b) \begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho 2}_1 \end{pmatrix} + \gamma_{b11} A^2_{11} \begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho 2}_1 \end{pmatrix} + \gamma_{b11} A^2_{11} \begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho 1}_1 \end{pmatrix} \\ - i\omega_1 \frac{\sqrt{6}}{4} \begin{pmatrix} 0 \\ b^{\rho 0}_1 \end{pmatrix} e^{-i\omega t}$$

$$(III-50) \quad \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho 1}_1 \end{pmatrix} = -(\Gamma_b(1) + i\omega_b) \begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho 1}_1 \end{pmatrix} + \gamma_{b11} A^1_{11} \begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho 1}_1 \end{pmatrix} + \gamma_{b11} A^1_{12} \begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho 2}_1 \end{pmatrix} \\ - i\omega_1 \frac{\sqrt{2}}{4} \begin{pmatrix} 0 \\ b^{\rho 0}_1 \end{pmatrix} e^{-i\omega t}$$

On calcule les coefficients  $A^{kk'}$  par la même méthode qu'au §(α).

On obtient :

$$(III-51) \quad A^2_{11} = A^2_{11} = A^1_{11} = A^1_{11} = -\frac{1}{4}$$

Les équations concernant  $\begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho-1}_1 \end{pmatrix}$  et  $\begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho-1}_2 \end{pmatrix}$  se déduisent de (III-50,51) en utilisant le fait que :

$$(III-52) \quad b^{\rho k}_q = (-)^q (b^{\rho k}_{-q})^*$$

La solution stationnaire du système (III-49-50) s'écrit :

$$(III-53) \quad \begin{pmatrix} 1 \\ b^{\rho 2}_1 \end{pmatrix} = -\frac{i\omega_1}{4} \left[ \sqrt{6} \begin{pmatrix} 0 \\ b^{\rho 0}_1 \end{pmatrix} - \sqrt{2} \frac{\gamma}{4} \begin{pmatrix} 0 \\ b^{\rho 0}_1 \end{pmatrix} \frac{1}{\Gamma_b(1) + \frac{\gamma}{4} + i(\omega_b - \omega)} \right] \\ \frac{e^{-i\omega t}}{\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{4} + i(\omega_b - \omega) - \frac{\gamma^2}{16} \frac{1}{\Gamma_b(1) + \frac{\gamma}{4} + i(\omega_b - \omega)}}$$

$$(III-54) \quad \begin{matrix} (1) \\ b \end{matrix} \rho_1^1 = - \frac{i\omega_1}{4} \left[ \sqrt{2} \begin{matrix} (0) \\ b \end{matrix} \rho_0^1 - \sqrt{6} \frac{\gamma}{4} \begin{matrix} (0) \\ b \end{matrix} \rho_0^2 \frac{1}{\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{4} + i(\omega_b - \omega)} \right]$$

$$\frac{e^{-i\omega t}}{\Gamma_b(1) + \frac{\gamma}{4} + i(\omega_b - \omega) - \frac{\gamma^2}{16} \frac{1}{\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{4} + i(\omega_b - \omega)}}$$

Compte tenu de (III-48) les équations (III-53,54) se mettent sous la forme :

$$(III-55) \quad \begin{matrix} (1) \\ b \end{matrix} \rho_1^2 = -i\omega_1 \frac{\sqrt{6}}{4} \begin{matrix} (0) \\ b \end{matrix} \rho_0^2 \frac{\Gamma_b(1) + \frac{\gamma}{4} \left[ 1 - \frac{\Gamma_b(2)}{\Gamma_b(1)} \right] + i(\omega_b - \omega)}{\left[ \Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{4} + i(\omega_b - \omega) \right] \left[ \Gamma_b(1) + \frac{\gamma}{4} + i(\omega_b - \omega) \right] - \frac{\gamma^2}{16}} e^{-i\omega t}$$

$$(III-56) \quad \begin{matrix} (1) \\ b \end{matrix} \rho_1^1 = -i\omega_1 \frac{\sqrt{6}}{4} \begin{matrix} (0) \\ b \end{matrix} \rho_0^2 \frac{\Gamma_b(2)}{\Gamma_b(1)} \frac{\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{4} \left[ 1 - \frac{\Gamma_b(1)}{\Gamma_b(2)} \right] + i(\omega_b - \omega)}{\left[ \Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{4} + i(\omega_b - \omega) \right] \left[ \Gamma_b(1) + \frac{\gamma}{4} + i(\omega_b - \omega) \right] - \frac{\gamma^2}{16}} e^{-i\omega t}$$

La forme des dénominateurs dans les expressions (III-55) et (III-56) laisse dès à présent prévoir que les courbes de résonances ne seront plus lorentziennes pour  $\Gamma_b(1) \neq \Gamma_b(2)$

(iii) second ordre en  $H_1$

La solution stationnaire des équations d'évolution au second ordre en  $H_1$  vérifie le système suivant :

$$(III-57) \quad \begin{matrix} (2) \\ b \end{matrix} \rho_0^2 = \frac{1}{\sqrt{6}} \gamma \left[ \begin{matrix} (2) \\ a \end{matrix} \rho_0^0 - \frac{1}{\sqrt{3}} \begin{matrix} (2) \\ b \end{matrix} \rho_0^0 - \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{matrix} (2) \\ b \end{matrix} \rho_0^1 - \frac{1}{\sqrt{6}} \begin{matrix} (2) \\ b \end{matrix} \rho_0^2 \right] - i\omega_1 \frac{\sqrt{6}}{4} \left[ \begin{matrix} (1) \\ b \end{matrix} \rho_1^2 e^{i\omega t} + \begin{matrix} (1) \\ b \end{matrix} \rho_{-1}^2 e^{-i\omega t} \right]$$

$$(III-58) \quad \Gamma_b(1) \begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 1 = \frac{1}{\sqrt{2}} \gamma \left[ \begin{matrix} (2) \\ a^{\rho 0} \end{matrix} 0 - \frac{1}{\sqrt{3}} \begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 0 - \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 1 - \frac{1}{\sqrt{6}} \begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 2 \right] \\ - i\omega_{1b} \frac{\sqrt{2}}{4} \left[ \begin{matrix} (1) \\ b^{\rho 1} \end{matrix} 1 e^{i\omega t} + \begin{matrix} (1) \\ b^{\rho -1} \end{matrix} 1 e^{-i\omega t} \right]$$

$$(III-59) \quad \Gamma_b(0) \begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 0 = \frac{1}{\sqrt{3}} \gamma \left[ \begin{matrix} (2) \\ a^{\rho 0} \end{matrix} 0 - \frac{1}{\sqrt{3}} \begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 0 - \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 1 - \frac{1}{\sqrt{6}} \begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 2 \right]$$

$$(III-60) \quad -\Gamma_a^* (0) \begin{matrix} (2) \\ a^{\rho 0} \end{matrix} 0 = \sqrt{3} \Gamma_b(0) \begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 0$$

En éliminant  $\begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 0$  et  $\begin{matrix} (2) \\ a^{\rho 0} \end{matrix} 0$ , on obtient :

$$(III-61) \quad \Gamma_b(2) \begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 2 = \frac{-1}{2\sqrt{3}} \frac{\gamma}{1+\gamma\tau} \left[ \begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 1 + \frac{1}{\sqrt{3}} \begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 2 \right] \\ - i\omega_{1b} \frac{\sqrt{6}}{4} \left[ \begin{matrix} (1) \\ b^{\rho 1} \end{matrix} 2 e^{i\omega t} + \begin{matrix} (1) \\ b^{\rho -1} \end{matrix} 2 e^{-i\omega t} \right]$$

$$(III-62) \quad \Gamma_b(1) \begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 1 = -\frac{1}{2} \frac{\gamma}{1+\gamma\tau} \left[ \begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 1 + \frac{1}{\sqrt{3}} \begin{matrix} (2) \\ b^{\rho 0} \end{matrix} 2 \right] \\ - i\omega_{1b} \frac{\sqrt{2}}{4} \left[ \begin{matrix} (1) \\ b^{\rho 1} \end{matrix} 1 e^{i\omega t} + \begin{matrix} (1) \\ b^{\rho -1} \end{matrix} 1 e^{-i\omega t} \right]$$

On voit sur ces expressions que la forme du signal détecté soit sur l'alignement soit sur l'orientation est un mélange des formes de courbes associées à (III-55) et (III-56). Calculons le signal sur l'alignement, qui est celui que nous observons expérimentalement.

Pour  $\Gamma_b(2) = 2\Gamma_b(1) = 2\Gamma$ , on obtient l'expression suivante :

$$(III-63) \quad \Gamma_b^{(2)} \rho_{b0}^{(2)} = -\frac{3}{4} \omega_1^2 \rho_{b0}^{(2)} \frac{(2\Gamma + \frac{3}{4}\gamma)}{1 + \gamma(\tau + \frac{7}{12\Gamma})}$$

$$\frac{(\omega_b - \omega)^2 \left[ 1 + \gamma \left( \tau + \frac{1}{3\Gamma} \right) \right] + \Gamma \left( \Gamma - \frac{\gamma}{4} \right) (1 + \gamma\tau) - \frac{\gamma}{6} (\Gamma + \gamma)}{\left[ \Gamma \left( 2\Gamma + \frac{3}{4}\gamma \right) - (\omega_b - \omega)^2 \right]^2 + (\omega_b - \omega)^2 \left( 3\Gamma + \frac{\gamma}{2} \right)^2}$$

La figure (III-1) donne la forme des courbes de résonance magnétique correspondantes pour plusieurs valeurs de  $\gamma$  : on voit que même lorsque l'intensité du champ de radiofréquence est très faible, la raie de résonance magnétique n'est plus lorentzienne. On peut vérifier que lorsque  $\Gamma_b^{(2)} = \Gamma_b^{(1)}$  on retrouve pour  $\rho_{b0}^{(2)}$  et  $\rho_{b0}^{(1)}$  un signal de forme lorentzienne de largeur  $\Gamma_b^{(2)} + \gamma/2$ , comme en pompage optique de polarisation  $\pi$ ; en effet quand  $\Gamma_b^{(2)} = \Gamma_b^{(1)}$ , il n'y a plus lieu de distinguer les cohérences  $\rho_{b1}^{(2)}$  et  $\rho_{b1}^{(1)}$ .

Ce phénomène que nous avons mis en évidence ici sur un niveau de  $J=1$  pompé optiquement en polarisation  $\sigma^+$  se produit de manière très générale dès que le laser est capable de coupler dans un même niveau des grandeurs tensorielles dont les temps de relaxation sont différents. (note\*)

### III-3b Transition $J=1 \leftrightarrow J=1$ excitée en polarisation linéaire $\pi$ .

Comme au paragraphe précédent, on peut, par un raisonnement très simple, déduire des relations entre les variations dues au laser des dif-

---

\* ) On peut comparer nos résultats à l'interprétation donnée par O. NEDELEC et coll. [57] des formes de raies de résonance magnétique anormales observées sur le niveau  $6^3P_2$  du mercure. Pour les expliquer ces auteurs avaient avancé l'hypothèse d'une relaxation par collisions anisotropes provoquant un couplage entre grandeurs tensorielles d'ordres différents.

---

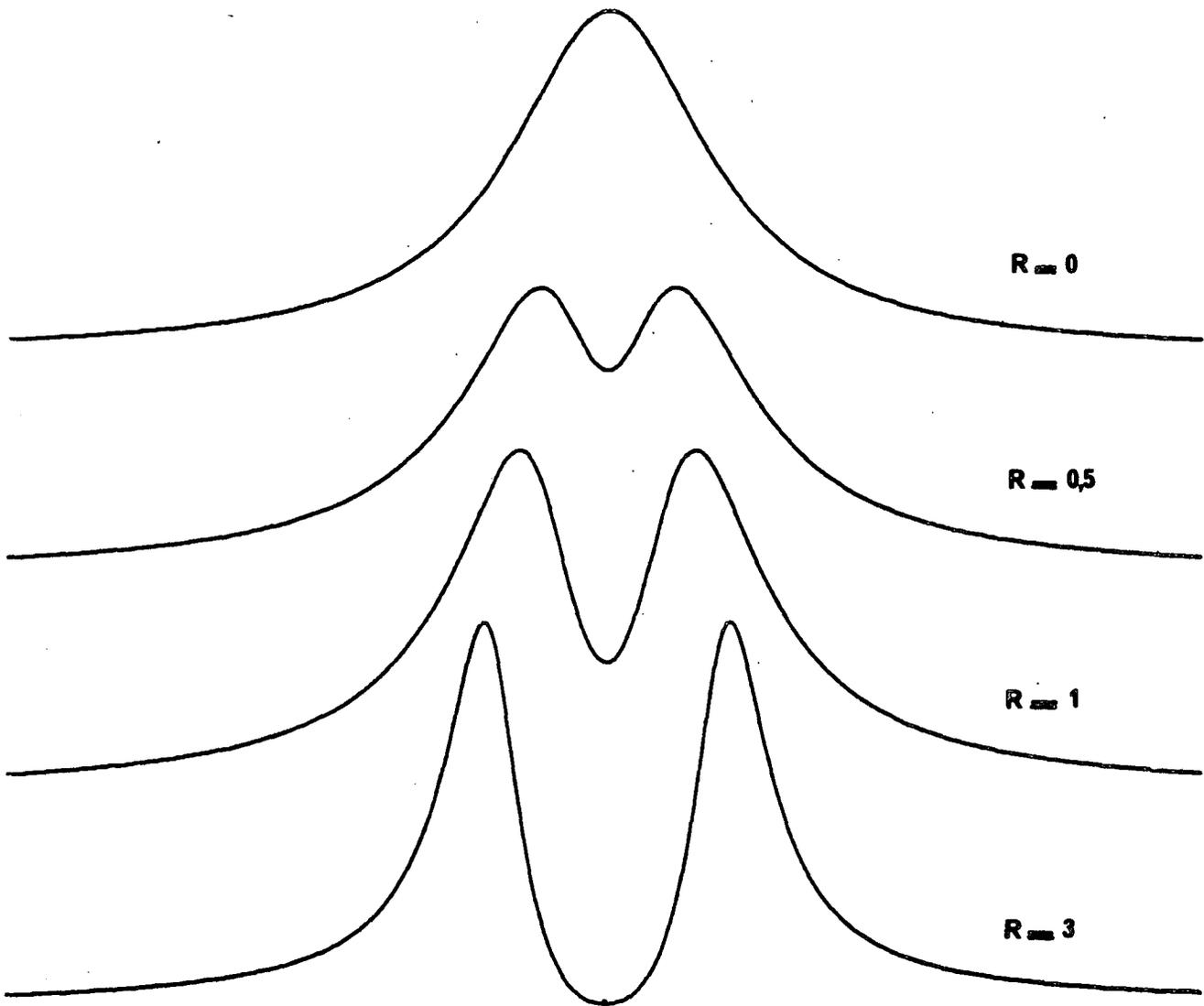
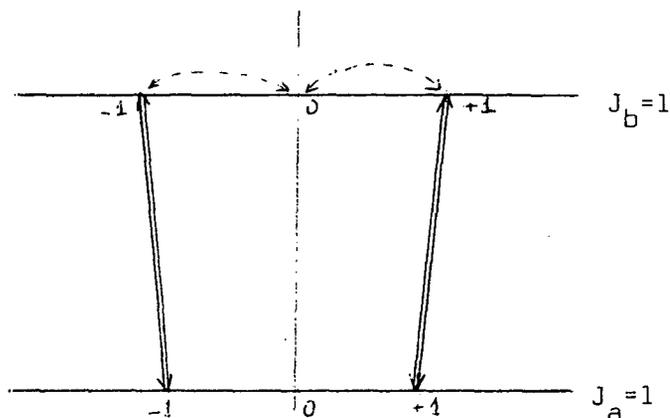


Figure III 1 : Courbes de résonance magnétique d'un niveau de  $J=1$  pompé optiquement sur une transition  $0 \leftrightarrow 1$  en polarisation circulaire, pour différentes valeurs de  $R = \gamma/\Gamma$ .

On a pris  $\Gamma_b(2) = 2\Gamma_b(1) = 2\Gamma$ ,  $\Gamma_b(0) = \Gamma/2$ ,  $\Gamma_a(0) = \Gamma$ .

Ces courbes représentent les variations de  $\rho_{00}^{(2)2} / \rho_{00}^{(0)2}$  avec  $\omega_b - \omega$  autour de  $\omega_b = \omega$ . L'échelle en ordonnée est la même pour les trois courbes correspondant à :  $R=0$ ,  $R=0,5$  et  $R=1$ . Elle est divisée par 3 pour la courbe  $R=3$ .

férentes composantes tensorielles de la matrice densité. En effet le diagramme ci-dessous est symétrique par rapport à la ligne joignant les sous-niveaux de  $m=0$ .



D'autre part la variation avec le laser de la population du sous-niveau  $m_b=1$  est opposée à celle de la population du sous-niveau  $m_a=1$ .

Ces remarques nous permettent d'écrire :

$$(III-64) \quad \left[ \frac{d}{dt} b^{\rho 11} \right]_{\text{laser}} = \left[ \frac{d}{dt} b^{\rho -1 -1} \right]_{\text{laser}} = - \left[ \frac{d}{dt} a^{\rho 11} \right]_{\text{laser}} = - \left[ \frac{d}{dt} a^{\rho -1 -1} \right]_{\text{laser}}$$

$$(III-65) \quad \left[ \frac{d}{dt} b^{\rho 00} \right]_{\text{laser}} = \left[ \frac{d}{dt} a^{\rho 00} \right]_{\text{laser}} = 0$$

D'autre part l'utilisation de l'équation (II-25a) nous donne :

$$(III-66) \quad \left[ \frac{d}{dt} b^{\rho 1 1} \right]_{\text{laser}} = - \frac{\gamma}{2} b^{\rho 1 1} + \frac{\gamma}{2} a^{\rho 1 1}$$

(dans ces trois relations, les indices de  $a^{\rho}$  et  $b^{\rho}$  se rapportent au nombre quantique  $m$  du sous-niveau envisagé).

Comme au § a, nous en déduisons :

$$(III-67) \quad \left[ \frac{d}{dt} b^{\rho 0 0} \right]_{\text{laser}} = \sqrt{2} \left[ \frac{d}{dt} b^{\rho 0 2} \right]_{\text{laser}} = -\sqrt{2} \left[ \frac{d}{dt} a^{\rho 0 2} \right]_{\text{laser}}$$

$$\left[ \frac{d}{dt} b^{\rho 0 1} \right]_{\text{laser}} = \left[ \frac{d}{dt} a^{\rho 0 1} \right]_{\text{laser}} = 0$$

$$(III-68) \quad \left[ \frac{d}{dt} \rho_{b0}^{(2)} \right]_{\text{laser}} = \frac{1}{\sqrt{6}} \gamma \left[ \frac{1}{\sqrt{3}} \rho_{a0}^{(0)} - \frac{1}{\sqrt{3}} \rho_{b0}^{(0)} + \frac{1}{\sqrt{6}} \rho_{a0}^{(2)} - \frac{1}{\sqrt{6}} \rho_{b0}^{(2)} \right]$$

$$(III-69) \quad \Gamma_a^*(0) (\rho_{a0}^{(0)} - \sqrt{3} n_a) = - \Gamma_b(0) (\rho_{b0}^{(0)} - \sqrt{3} n_b)$$

où  $\Gamma_a^*(0)$  est défini par (III-31)

(i) ordre zéro en  $H_1$

En l'absence de champ de radiofréquence, le laser crée de l'alignement longitudinal dans les deux niveaux de la transition,  $\rho_{a0}^{(0)2}$  et  $\rho_{b0}^{(0)2}$ . Pour étudier la forme du signal, il nous suffira de connaître le rapport  $\rho_{a0}^{(0)2} / \rho_{b0}^{(0)2}$ . Or on a :

$$(III-70) \quad \frac{d}{dt} \rho_{b0}^{(0)2} = - \Gamma_b(2) \rho_{b0}^{(0)2} + \left[ \frac{d}{dt} \rho_{b0}^{(0)2} \right]_{\text{laser}}$$

$$(III-71) \quad \frac{d}{dt} \rho_{a0}^{(0)2} = - \Gamma_a(2) \rho_{a0}^{(0)2} + \left[ \frac{d}{dt} \rho_{a0}^{(0)2} \right]_{\text{laser}} - \frac{1}{2} \gamma_{ba} \rho_{b0}^{(0)2}$$

Le dernier terme de (III-71) est le terme de transfert d'alignement par émission spontanée. Le coefficient  $(-\frac{1}{2})$  est déterminé à partir de la réf. [55]. Les équations (III-70), (III-71), (III-67) conduisent à :

$$(III-72) \quad \rho_{a0}^{(0)2} = - \frac{\Gamma_b(2)}{\Gamma_a^*(2)} \rho_{b0}^{(0)2}$$

où

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

(ii) premier ordre en  $H_1$  .

Au premier ordre en  $H_1$  les seules composantes dont le terme-source n'est pas nul sont  $a_{\pm 1}^{\rho 2}$  et  $b_{\pm 1}^{\rho 2}$  . Les équations d'évolution s'écrivent :

$$(III-74) \quad \frac{d}{dt} b_{\rho 1}^{(1)2} = - \left( \Gamma_b^{(2)} + i\omega_b + \gamma_{bb} A_{11}^{22} \right) b_{\rho 1}^{(1)2} + b_a A_{11}^{22} \gamma_{a\rho 1}^{(1)2} - i\omega_1 \frac{\sqrt{6}}{4} \omega_{1b} b_{\rho 0}^{(0)2} e^{-i\omega t}$$

$$(III-75) \quad \frac{d}{dt} a_{\rho 1}^{(1)2} = - \left( \Gamma_a^{(2)} + i\omega_a + \gamma_{aa} A_{11}^{22} \right) a_{\rho 1}^{(1)2} + a_b A_{11}^{22} \gamma_{b\rho 1}^{(1)2} - \frac{\gamma_{ba}}{2} a_{\rho 1}^{(1)2} - i\omega_1 \frac{\sqrt{6}}{4} \omega_{1a} a_{\rho 0}^{(0)2} e^{-i\omega t}$$

où nous avons posé :

$$\omega_{1a} = g_{J_a} \mu_B H_1$$

$$\omega_{1b} = g_{J_b} \mu_B H_1$$

Les coefficients  $b_{q q'}^{A^k k'}$  se calculent comme au § 3-a . On obtient :

$$b_{bb}^{A_{11}^{22}} = b_{aa}^{A_{11}^{22}} = b_{ab}^{A_{11}^{22}} = b_{ba}^{A_{11}^{22}} = \frac{1}{8}$$

On cherche la solution stationnaire de fréquence  $\omega$  des équations (III-74),

(III-75) Eliminant  $a_{\rho 1}^{(1)2}$  , on obtient :

$$(III-76) \quad b_{\rho 1}^{(1)2} = -i \frac{\sqrt{6}}{4} \left[ \omega_{1b} b_{\rho 0}^{(0)2} + \frac{\gamma}{8} \frac{1}{\Gamma_a^{(2)} + \frac{\gamma}{8} + i(\omega_a - \omega)} \omega_{1a} a_{\rho 0}^{(0)2} \right] e^{-i\omega t} \cdot \frac{1}{\Gamma_b^{(2)} + \frac{\gamma}{8} + i(\omega_b - \omega) - \frac{1}{\Gamma_a^{(2)} + \frac{\gamma}{8} + i(\omega_a - \omega)} \left[ \frac{\gamma^2}{64} - \frac{\gamma}{8} \frac{\gamma_{ba}}{2} \right]}$$

Supposons que le champ  $H_0$  soit suffisamment intense pour que les courbes de résonance magnétique correspondant aux niveaux a et b soient bien séparées :

$$(III-77) \quad \omega_a - \omega_b \gg \Gamma_a(2), \Gamma_b(2), \gamma.$$

Lorsque la fréquence  $\omega$  est proche de la résonance pour le niveau b ( $\omega - \omega_b \lesssim \Gamma_b(2)$ ), le terme imaginaire des dénominateurs en  $\Gamma_a(2) + \gamma/8 + i(\omega_a - \omega)$  est largement prépondérant. L'expression (III-76) se simplifie alors :

$$(III-78) \quad \begin{matrix} (1) \\ b \end{matrix} \rho_1^2 = -i \frac{\sqrt{6}}{4} \left[ \omega_{1b} \begin{matrix} (0) \\ b \end{matrix} \rho_0^2 - \frac{\gamma}{8} \frac{i}{\omega_a - \omega} \omega_{1a} \begin{matrix} (0) \\ a \end{matrix} \rho_0^2 \right] \frac{e^{-i\omega t}}{\Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{8} + i(\omega_b - \omega) + \frac{i}{\omega_a - \omega} \left( \frac{\gamma^2}{64} - \frac{\gamma \gamma_{ba}}{16} \right)}$$

(iii) second ordre en  $H_1$

Au second ordre de radiofréquence, (III-68) permet d'écrire l'équation donnant le terme non modulé de  $\begin{matrix} (2) \\ \rho_0 \end{matrix}^2$  en régime stationnaire.

$$(III-79) \quad \Gamma_b(2) \begin{matrix} (2) \\ b \end{matrix} \rho_0^2 = \frac{\gamma}{\sqrt{6}} \left[ \frac{1}{\sqrt{3}} \begin{matrix} (2) \\ a \end{matrix} \rho_0^2 + \frac{1}{\sqrt{6}} \begin{matrix} (2) \\ a \end{matrix} \rho_0^2 - \frac{1}{\sqrt{3}} \begin{matrix} (2) \\ b \end{matrix} \rho_0^2 - \frac{1}{\sqrt{6}} \begin{matrix} (2) \\ b \end{matrix} \rho_0^2 \right] - i\omega_{1b} \frac{\sqrt{6}}{4} \left[ \begin{matrix} (1) \\ b \end{matrix} \rho_1^2 e^{i\omega t} + \begin{matrix} (1) \\ b \end{matrix} \rho_{-1}^2 e^{-i\omega t} \right]$$

Or d'après (III-78), on a :

$$(III-80) \quad -i\omega_{1b} \frac{\sqrt{6}}{4} \left[ \begin{matrix} (1) \\ b \end{matrix} \rho_1^2 e^{i\omega t} + \begin{matrix} (1) \\ b \end{matrix} \rho_{-1}^2 e^{-i\omega t} \right] = -\frac{3}{4} \omega_{1b}^2 \begin{matrix} (0) \\ b \end{matrix} \rho_0^2 \left[ \frac{\Gamma_b'}{\Gamma_b'^2 + (\omega_b - \omega + s)^2} + \frac{\gamma}{8} \frac{g_{ja}}{g_{jb}} \frac{\Gamma_b(2)}{\Gamma_a^*(2)} \frac{1}{\omega_a - \omega} \frac{\omega_b - \omega + s}{\Gamma_b'^2 + (\omega_b - \omega + s)^2} \right]$$

où l'on a posé :

$$(III-81) \quad \Gamma'_b = \Gamma_b(2) + \frac{\gamma}{8}$$

$$(III-82) \quad s = \frac{1}{\omega_a - \omega} - \frac{\gamma}{8} \left[ \frac{\gamma}{8} - \frac{\gamma_{ba}}{2} \right]$$

Au voisinage de la résonance sur le niveau b, nous négligeons, à cet ordre en  $H_1$ , les ailes de la résonance correspondant au niveau a. Les relations (III-67) permettent alors de montrer qu'au second membre de (III-79) le premier terme entre crochets est proportionnel à  $\rho_0^{(2)}$ ; soit  $-\alpha(\gamma)$  le coefficient de proportionnalité, que nous ne calculerons pas explicitement ici. On a alors

$$\left[ \Gamma_b(2) + \alpha(\gamma) \right] \rho_0^{(2)} = -i\omega_{1b} \frac{\sqrt{6}}{4} \left[ \rho_1^{(1)} e^{i\omega t} + \rho_{-1}^{(1)} e^{-i\omega t} \right]$$

La forme de la courbe de résonance est donc donnée par l'expression (III-80). Le signal est ainsi la somme d'une courbe d'absorption de Lorentz et d'une courbe de dispersion de même largeur,  $\Gamma'_b$ . La relation (III-81) montre que la courbe s'élargit linéairement avec l'intensité du laser (note\*).

L'amplitude relative de la courbe de dispersion est :

$$\frac{\gamma}{8} \frac{gJ_a}{gJ_b} \frac{\Gamma_b(2)}{\Gamma_a^*(2)} \frac{1}{\omega_a - \omega}$$

La condition (III-77) nous permet de négliger la variation de  $\omega_a - \omega$  lorsque l'on fait un balayage magnétique de la résonance correspondant au niveau b.

---

\*) Nous n'obtenons pas ici d'effet de la circulation de cohérence sur la largeur de la courbe de résonance, car nous avons négligé dans (III-76) les termes réels du dénominateur en  $\Gamma_a(2) + \gamma/8 + i(\omega_a - \omega)$  qui contribuent à cette largeur.

---

La courbe de résonance présente donc une certaine dissymétrie d'autant plus prononcée que le laser est intense.

De plus, la courbe de résonance magnétique n'est plus centrée en  $\omega_b = \omega$  mais en  $\omega_b = \omega - s$  où  $s$  est donné par (III-82) ;  $s$  est le shift par transitions réelles, bien connu [36], dû à la circulation de cohérence dans le cycle de pompage optique. Remarquons qu'il se compose ici de deux termes : le premier fait intervenir l'émission stimulée, le second l'émission spontanée.

Nous avons donc mis en évidence sur des exemples simples quelques caractères de la raie de résonance magnétique en pompage optique laser, à la limite des intensités de champ de radiofréquence très faibles. Nos expériences nous ont amenés à étudier des cas plus complexes (transitions  $J=1 \leftrightarrow J=1$ ,  $J=1 \leftrightarrow J=2$  et  $J=2 \leftrightarrow J=2$  en polarisation circulaire  $\sigma^+$  ou  $\sigma^-$ , où les effets calculés aux § 3a et 3b sont présents en même temps. La dépendance de la forme et de la position de la raie de résonance magnétique par rapport à l'intensité du laser peut donc être complexe : en ce qui concerne la mesure de facteurs de Landé, il est important d'étudier soigneusement la dépendance des résultats expérimentaux par rapport à l'intensité du laser.

## Chapitre IV

LES TRANSITIONS A DEUX PHOTONS SANS EFFET DOPPLER

Dans les deux chapitres précédents, nous avons présenté quelques propriétés des croisements de niveaux et de la résonance magnétique en présence de pompage optique laser. Mais les caractères fondamentaux de l'émission laser ne sont pas utilisés dans ces méthodes d'étude des niveaux atomiques : Les travaux de M. DUCLOY [ 16 ] ont en effet montré que le laser est équivalent dans de telles expériences à une lampe spectrale qui fournirait une très grande densité d'énergie sur une raie donnée. C'est cette propriété qui a permis d'étendre les méthodes de croisements de niveaux et de résonance magnétique à de nombreux niveaux qu'il n'aurait pas été possible d'exciter optiquement avec une lampe.

La spectroscopie d'absorption a deux photons sans effet Doppler [ 14 ] par contre n'a pu voir le jour que grâce au laser. Rappelons-en brièvement le principe; pour un atome dont la composante de vitesse suivant Oz est  $v$ , l'absorption, sur la transition entre les niveaux a et b de deux photons de fréquence  $\omega_0$  se propageant en sens opposés suivant Oz obéit à la condition de résonance :

$$(IV-1) \quad \omega_b - \omega_a = \omega_0 \left(1 - \frac{v}{c}\right) + \omega_0 \left(1 + \frac{v}{c}\right) = 2\omega_0$$

où  $\omega_b - \omega_a$  est la fréquence de la transition  $a \rightarrow b$  interdite dans l'approximation dipolaire électrique.

(On suppose qu'il n'y a pas à la largeur Doppler près de niveau d'énergie  $\hbar \omega_i$  tel que  $\omega_a - \omega_i = \omega_0$  ).

L'effet Doppler du premier ordre disparaît, et la largeur de ces résonances lorsque  $\omega$  varie est une largeur homogène, qui est de l'ordre de la largeur de la transition atomique  $a \rightarrow b$ . Pour exploiter cette

propriété il fallait donc disposer d'une source à la fois très monochromatique (de largeur inférieure à  $\Gamma_b$ ) et très intense. En effet l'expression de la probabilité d'absorption de deux photons connue depuis longtemps [61] montrait que celle-ci, en général très faible aux basses intensités, varie proportionnellement au carré de la puissance lumineuse ; un calcul d'ordre de grandeur [59] permettait de se convaincre qu'avec les puissances fournies par les lasers à colorants, la probabilité d'absorption de deux photons sur certaines transitions devenait non négligeable. F. BIRABEN, B. CAGNAC et G. GRYNBERG [59] avaient de plus fait ressortir l'intérêt spectroscopique de cette méthode en montrant que l'effet Doppler du second ordre et les light shifts étaient souvent négligeables et ne risquaient pas d'entacher les mesures ainsi réalisées d'erreurs systématiques.

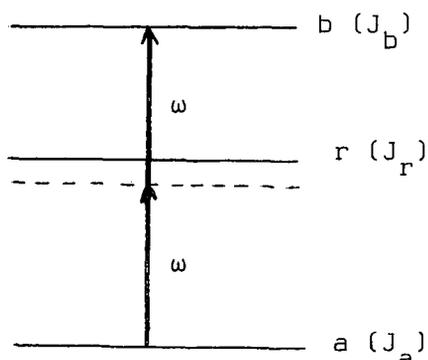
Les premières expériences, réalisées simultanément par plusieurs groupes d'expérimentateurs [17][62] portaient sur le sodium. Depuis, la méthode a été appliquée à l'hydrogène [63], au néon [66], au potassium [64] au rubidium [65] et semble également très prometteuse dans les études sur les molécules [67].

Nous présentons dans ce chapitre un calcul semi-classique permettant d'obtenir les modifications de la matrice densité dans le niveau supérieur  $b$  sous l'effet du pompage à deux photons. Cette méthode, bien que moins élégante que celle qui consiste à utiliser directement l'opérateur de transition  $Q_{12}$  [68], lui est en fait formellement semblable et présente l'intérêt de mettre en évidence le rôle joué par les cohérences optiques.

#### V-1 Calcul de la matrice densité après absorption de deux photons

---

Considérons un système à trois niveaux  $a$ ,  $r$ ,  $b$ , de moments cinétiques  $J_a$ ,  $J_r$ ,  $J_b$  ;  $a$  est un niveau fondamental ou métastable,  $r$  et  $b$



sont des niveaux excités dont les populations initiales sont négligeables devant celle du niveau  $a$ . L'atome est soumis à une onde laser monomode de fréquence  $\omega$  :  $\omega$  est voisine de la fréquence  $\omega_0$  obéissant à la condition de résonance pour l'absorption de deux photons sur la transition  $a \rightarrow b$  (IV-1).

Le niveau intermédiaire  $r$  se situe à une distance en énergie  $\hbar(\omega_r - \omega_a)$  du niveau  $a$ . Nous posons  $\Delta\omega_r = (\omega_r - \omega_a) - \omega \sim \omega - (\omega_b - \omega_r)$  et nous nous plaçons dans le cas où  $\Delta\omega_r$  est bien supérieur à la largeur Doppler de la transition  $a \rightarrow r$ . Nous supposons de plus que le mode du laser a une certaine largeur  $\Delta_m$ , et que  $\Delta_m$  est nettement supérieur à la "force" du couplage  $P_{ar}^2 P_{rb}^2 E^4 / \Delta\omega_r^2$  (cf Eq. IV-10). En d'autres termes, le temps de pompage du niveau  $a$  est supposé grand devant  $\Delta_m^{-1}$ . Nous nous trouvons donc dans le cadre de la théorie du "rétrécissement par le mouvement" (ou approximation de mémoire courte). Notons que même si le laser est parfaitement monochromatique, l'hypothèse de mémoire courte sera encore réalisée, à condition que la durée de vie du niveau supérieur soit nettement plus faible que le temps de pompage (note\*). Ces hypothèses sont bien réalisées dans nos conditions expérimentales.

L'onde laser est une onde stationnaire qui peut se décomposer en deux ondes se propageant en sens opposés : le champ électrique total peut donc s'écrire :

$$(IV-2) \quad \vec{E} = \sum_{\vec{e} = +, -} E \left[ \vec{e} e^{-i(\omega t - \vec{e}\vec{k}\vec{r})} + \vec{e}^* e^{i(\omega t - \vec{e}\vec{k}\vec{r})} \right]$$

où nous avons introduit une polarisation complexe  $\vec{e}$  conformément aux conventions de Heitler [69]

---

\* ) L'approximation de mémoire courte nous permet de nous affranchir de l'hypothèse (5) de la ref. [59], consistant à considérer comme négligeable la contribution des atomes de vitesse nulle à  $\Gamma_b/kp_{rs}$ . L'effet Raman stimulé où l'atome absorbe un photon se propageant dans un sens et émet un photon se propageant en sens inverse, qui peut se produire pour les atomes de vitesse nulle joue alors un rôle négligeable dans le peuplement de l'état excité.

---

L'hamiltonien d'interaction entre le laser et le champ électrique  $\vec{E}$  est

$$(IV-4) \quad V(r,t) = - \vec{P} \cdot \vec{E} = - \sum_q (-)^q E_{-q} P_q$$

où les  $P_q$  sont les composantes standard de l'opérateur dipôle électrique  $\vec{P}$  et :

$$(IV-5) \quad E_q = E \sum_{\epsilon=+,-} (e_q e^{-i(\omega t - \epsilon \vec{k} \cdot \vec{r})} + (e^*)_q e^{i(\omega t - \epsilon \vec{k} \cdot \vec{r})})$$

dans la suite nous noterons  $P_{\alpha\beta}$  l'élément de matrice réduit du dipôle électrique entre les états  $\alpha$  et  $\beta$  :  $P_{\alpha\beta} = \langle \alpha | \vec{P} | \beta \rangle$ .

$V$  n'a pas d'éléments de matrice à l'intérieur des niveaux a, b, r ni entre les niveaux a et b.

	a	r	b
V=	0	$a_r V$	0
	$r_a V$	0	$r_b V$
	0	$b_r V$	0

#### IV-1a Equation d'évolution de la matrice densité

Seule intervient dans le problème la composante  $v$  de la vitesse des atomes suivant Oz, la moyenne sur les autres composantes étant immédiate. Dans le référentiel du laboratoire l'équation d'évolution de la matrice densité s'écrit :

$$(IV-3) \quad \frac{d\rho}{dt} = \left( \frac{\partial \rho}{\partial t} + v \frac{\partial \rho}{\partial z} \right) = \left[ \frac{\partial \rho}{\partial t} \right]_{\text{relax}} - i [\mathcal{H}_0, \rho] - i [V, \rho]$$

$\left[ \frac{d\rho}{dt} \right]_{\text{relax}}$  représente l'effet de la relaxation,  $\mathcal{H}_0$  l'hamiltonien de l'atome en l'absence de laser.

La matrice densité  $\rho$  a des composantes à l'intérieur de chaque niveau,  $a^\rho$ ,  $r^\rho$  et  $b^\rho$  et entre chacun de ces niveaux,  $ar^\rho$ ,  $rb^\rho$  et  $ab^\rho$ . Pour pouvoir traiter correctement la relaxation par collisions, nous utiliserons le développement de ces composantes sur les bases d'opérateurs tensoriels irréductibles  $\alpha\beta T_q^k$  (où  $\alpha, \beta = a, b$  ou  $r$ ).

Nous supposons d'autre part que le temps de transit de l'atome à travers le faisceau laser est grand devant la durée de vie des cohérences optiques (note \*); cette condition est bien vérifiée dans nos expériences.

L'approximation séculaire sur les fréquences optiques nous permet de déduire de (IV-3) le système suivant :

$$(IV-4a) \quad \frac{d}{dt} ar^\rho = - ([\Gamma_{ar}] - i\omega_{ra}) ar^\rho - i(ar^V r^\rho - a^\rho ar^V - ab^\rho br^V)$$

$$(IV-4b) \quad \frac{d}{dt} ab^\rho = - ([\Gamma_{ab}] - i\omega_{ba}) ab^\rho - i(ar^V rb^\rho - ar^\rho rb^V)$$

$$(IV-4c) \quad \frac{d}{dt} rb^\rho = - ([\Gamma_{rb}] - i\omega_{br}) rb^\rho - i(rb^V b^\rho + ra^V ab^\rho - r^\rho rb^V)$$

$$(IV-4d) \quad \frac{d}{dt} b^\rho = - [\Gamma_b] b^\rho - i(br^V rb^\rho - br^\rho rb^V)$$

$$(IV-4e) \quad \frac{d}{dt} r^\rho = - [\Gamma_r] r^\rho - i(rb^V br^\rho + ra^V ar^\rho - rb^\rho br^V - ra^\rho ar^V)$$

$$(IV-4f) \quad \frac{d}{dt} a^\rho = - [\Gamma_a] a^\rho - i(ar^V ra^\rho - ar^\rho ra^V)$$

$\omega_{\alpha\beta} = \omega_\alpha - \omega_\beta$  est la fréquence d'évolution de la cohérence optique  $\alpha\beta^\rho$ .  $[\Gamma_{\alpha\beta}]$  et  $[\Gamma_\alpha]$  sont des matrices représentant la relaxation. Elles sont diagonales dans la base des opérateurs tensoriels irréductibles ; leurs éléments sont les  $\Gamma_\alpha(k)$ ,  $\Gamma_{\alpha\beta}(k)$ , taux de relaxation des observables tensorielles d'ordre  $k$ .

---

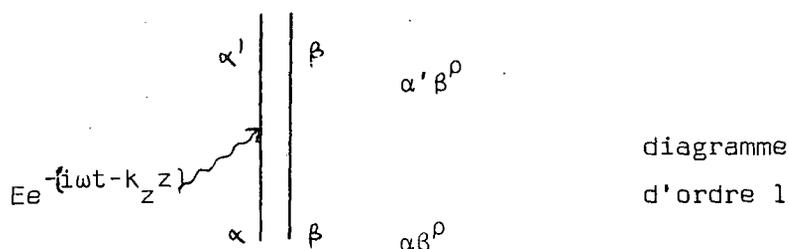
\* ) C. BORDE a montré [70] que dans le cas où le temps de transit à travers le faisceau laser devient plus petit que la durée de vie des cohérences optiques, la forme de raie a des propriétés très différentes de celles que nous allons discuter : en particulier lorsque le temps de transit a un rôle dominant, la forme de raie est celle d'une double exponentielle (avec un point de rebroussement sur l'axe).

---

Pour déterminer les composantes stationnaires  $\rho_{bq}^k$  de la matrice densité à l'intérieur du niveau b, nous faisons un calcul de perturbation au 4ème ordre par rapport au champ électrique E de l'onde laser, en supposant qu'en l'absence de laser, seul le niveau a est peuplé :  $\rho_a^{(0)} = \sqrt{2J_a + 1} n_a \begin{matrix} T \\ a \\ 0 \end{matrix}$

#### IV-1b Interprétation du problème à l'aide de diagrammes

On peut représenter les termes qui interviennent aux ordres successifs du développement de perturbation par des diagrammes analogues à ceux qu'utilise M. DUMONT dans sa thèse.



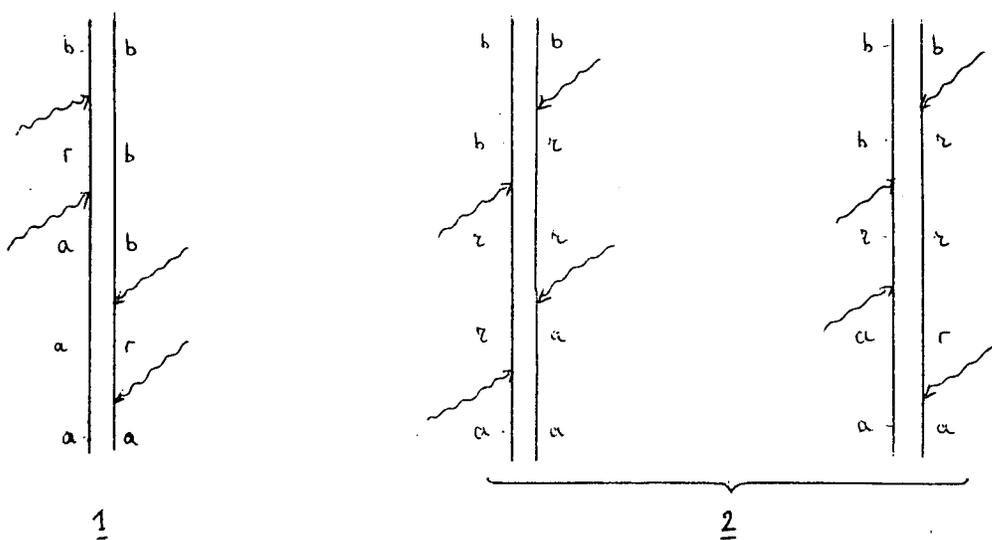
Un tel diagramme est constitué de deux traits verticaux sur lesquels sont indiqués les valeurs des indices  $\alpha$  (trait de gauche) et  $\beta$  (trait de droite) de la composante  $\rho_{\alpha\beta}^0$  de la matrice densité. L'évolution se déroule de bas en haut. Chaque interaction avec le champ électrique de l'onde laser est représentée par une flèche montante ou descendante selon qu'il s'agit de la partie à fréquence positive ou négative du champ. Suivant le signe de la différence des énergies des niveaux  $\alpha$  et  $\alpha'$ , l'approximation séculaire permet de négliger l'interaction avec la partie de fréquence positive ou négative du champ. La flèche vient de la gauche ou de la droite suivant que l'atome interagit avec l'onde se propageant dans le sens positif ( $\epsilon = +$ ) ou négatif ( $\epsilon = -$ ).

A chaque ordre de perturbation, nous prenons la solution stationnaire de l'équation correspondante ; on voit alors que sur un diagramme l'évolution du système entre deux interactions avec le champ électrique est représentée (par exemple pour la composante  $\rho_{\alpha\beta}^k$ ) par le facteur résonnant

$$(IV-5) \quad \frac{e^{-i(\Omega t - \epsilon k_z z)}}{\Gamma_{\alpha\beta}(k) - i(\omega_{\beta\alpha} + \Omega - \epsilon kv)}$$

où  $\Omega$  est la somme des fréquences temporelles des ondes qui sont intervenues depuis le bas du diagramme,  $\epsilon k_z$  la somme des fréquences spatiales correspondantes. Dans l'expression de la composante de la matrice densité terminant le diagramme, on obtient donc un produit de dénominateurs analogues à celui de (IV-5).

Si nous ne détaillons pas, pour l'instant, le sens de propagation du champ électrique, nous obtenons trois types de diagrammes du 4ème ordre qui aboutissent à  $b^{\rho k}$  en respectant la condition  $\omega_{ba} = 2\omega$ .



Il faut ajouter à ces diagrammes les diagrammes "complexes conjugués" obtenus en échangeant les parties droite et gauche de chaque diagramme et sommer sur les différentes composantes de la polarisation du champ électrique.

Montrons tout d'abord que lorsque  $\Delta\omega_r$  est nettement supérieur à la largeur Doppler, les diagrammes du type 2 qui passent par la création de populations à l'intérieur du niveau r ont une contribution négligeable devant les diagrammes du type 1 qui passent par la création de cohérences optiques entre les niveaux a et b.

En effet, les remarques faites plus haut nous permettent de déterminer la forme des facteurs qui interviennent à chaque interaction avec le laser dans les diagrammes du type 2, ceci sans faire le calcul complet des coefficients.

La somme des deux diagrammes représentés et de leurs complexes conjugués donne une contribution à  $\rho_b^{(4)}$  de la forme

$$\rho_b^{(4)} \propto |P_{ar}|^2 |P_{rb}|^2 E^4 \left[ \frac{1}{(\Gamma_{ar} + i\Delta\omega_r)\Gamma_r(\Gamma_{rb} + i\Delta\omega_r)\Gamma_b} + \text{c.c.} + \frac{1}{(\Gamma_{ar} - i\Delta\omega_r)\Gamma_r(\Gamma_{rb} + i\Delta\omega_r)\Gamma_b} + \text{c.c.} \right]$$

(On a considéré qu'il n'y avait qu'un seul temps de relaxation par niveau ou par cohérence optique et on a négligé  $k_z v$  devant  $\Delta\omega_r$ )

Dans les hypothèses que nous avons prises ( $\Delta\omega_r \gg \Gamma_r$ ,  $k_z v$ ) l'expression ci-dessus vaut :

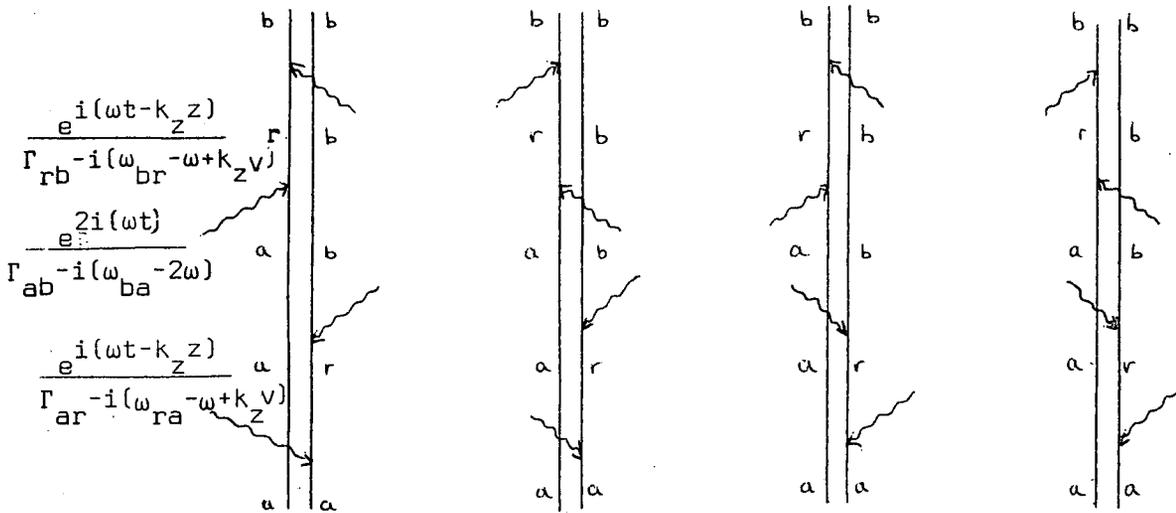
$$\rho_b^{(4)} \propto \frac{|P_{ar}|^2 |P_{rb}|^2 E^4}{(\Delta\omega_r)^4}$$

La contribution des diagrammes de type 2 est donc négligeable par rapport à celle des diagrammes de type 1, dont nous allons voir qu'elle est en  $|P_{ar}|^2 |P_{rb}|^2 E^4 / (\Delta\omega_r)^2$ . En revanche, si le niveau intermédiaire est quasi-résonnant, les contributions des deux types de diagramme sont comparables [75].

Détaillons maintenant les chemins du type 1. Si l'on considère que chaque interaction peut se faire avec un champ électrique se propageant dans un sens ou dans l'autre, on obtient  $2^4 = 16$  diagrammes (plus leurs complexes conjugués).

Avec 4 champs électriques se propageant dans le même sens on peut construire deux diagrammes, mais dans ce cas l'effet Doppler n'est pas éliminé sur le signal. Si l'on prend 3 champs électriques se propageant dans un sens et un dans l'autre, on vérifie aisément que le résultat est incompatible avec l'approximation séculaire ( $\rho_b$  est modulé à  $\pm k_z z$ ). On élimine ainsi encore 8 chemins. Restent 6 diagrammes construits avec deux champs électriques se propageant dans un sens et deux dans l'autre. Deux d'entre eux sont "non séculaires"; les quatre derniers, qui contribuent effectivement au signal, sont représentés ci-dessous (il faut

leur adjoindre leurs complexes conjugués).



Remarquons que dans chacun de ces diagrammes, le dénominateur lié à l'évolution de la cohérence optique  $\rho_{ab}$  est indépendant de la vitesse de l'atome. Dans les dénominateurs qui apparaissent après la 1ère et la 3ème interaction avec le champ électrique, la partie réelle peut être négligée devant la partie imaginaire, et on peut remplacer leur produit par  $-1 / (\Delta\omega_r)^2$ .

IV-1c Résultats du calcul

Les équations (IV-4) permettent de calculer les coefficients qui interviennent à chaque ordre de perturbation; on obtient les résultats suivants :

a) Calcul de la matrice densité dans le niveau b

$$(IV-6) \quad \rho_{ar}^{(1)} = -i n_a \frac{P_{ar}}{\sqrt{3}} E \sum_{\substack{\epsilon=+,- \\ p}} \frac{e_p^* e^{i(\omega t - \epsilon k z)}}{-i \Delta\omega_r} \delta_{p,q}$$

$$(IV-7) \quad \rho_{ab}^{(2)} = -2i n_a \frac{P_{ar} P_{rb}}{\Delta\omega_r} E^2 (-)^{2J_r - J_a + J_b} \frac{e^{2i\omega t}}{\Gamma_{ab}^{(k_1)} - i(\omega_{ba} - 2\omega)} (-)^{q_1} a^*(k_1, -q_1, J_r)$$

où  $a(k, q, J_r)$  est défini par :

$$(IV-8) \quad a(k, q, J_r) = \sum_{p, p'} e_p e_{p'} \sqrt{2k+1} \begin{bmatrix} 1 & 1 & k \\ p & p' & q \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & k \\ J_b & J_a & J_r \end{Bmatrix}$$

Dans (IV-8), la somme sur les composantes de la polarisation s'annule lorsque ses termes sont antisymétriques dans l'échange de  $p$  et  $p'$  : les seules valeurs de  $k$  possibles sont donc 0 et 2. Ceci correspond au fait que l'interaction doit être symétrique dans l'échange des deux champs électriques avec lesquels l'atome interagit successivement. Par ailleurs la valeur  $k=0$  n'intervient que lorsque  $J_a = J_b$ .

Il est inutile de développer la cohérence optique  $r_b^\rho$ , obtenue au troisième ordre, sur les opérateurs tensoriels irréductibles; en effet nous ne nous intéressons pas à sa largeur, puisque nous négligeons la partie réelle du dénominateur dans la solution stationnaire. Or seule cette partie réelle dépend de l'ordre tensoriel.

$$(IV-9) \quad r_b^\rho = -2in_a \frac{P_{ar}^2 P_{rb}}{\sqrt{3} \Delta\omega_r^2} (-)^{J_r+J_b} \sum_{\epsilon=+,-} e^{i(\omega t - \epsilon k z)}$$

$$\sum_{\substack{k_1, q_1 \\ p''}} \frac{a^*(k_1, q_1; J_r)}{\Gamma_{ab}(k_1) - i(\omega_{ba} - 2\omega)} (-)^{q_1+p''} e_{p''} r_a^{\top_{-p''}} ab^{\top_{q_1}^{k_1}}$$

Au quatrième ordre, compte tenu des termes complexes conjugués des termes (IV-6), (IV-7) et (IV-9), on obtient :

(IV-10)

$$(4) \quad r_b^{\rho Q} = 4n_a \frac{P_{ar}^2 P_{rb}^2 E^4}{(\Delta\omega_r)^2} (-)^{J_a+J_b} \sum_{\substack{k_1, q_1 \\ k_2, q_2}} a^*(k_1, q_1; J_r) a(k_2, q_2; J_r)$$

$$(-)^{K+q_2} \sqrt{2k_1+1} \sqrt{2k_2+1} \sqrt{2K+1} \begin{bmatrix} k_1 & k_2 & K \\ q_1 & -q_2 & Q \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} k_1 & k_2 & K \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix}$$

$$\left[ \frac{1}{\Gamma_{ab}(k_1) - i(\omega_{ba} - 2\omega)} + \frac{1}{\Gamma_{ab}(k_2) + i(\omega_{ba} - 2\omega)} \right]$$

où  $a(k, q, J_r)$  est défini par (IV-8).

β) Discussion de la formule (IV-10)

On retrouve bien le résultat classique [61] prévoyant un signal proportionnel au produit des forces d'oscillateur sur les deux transitions mises en cause (éléments de matrice réduits du dipôle électrique), au carré de l'intensité lumineuse et inversement proportionnel au carré du "défaut d'énergie" associé au niveau relai.

Etudions maintenant la dépendance du signal en fonction de la fréquence du laser; l'effet Doppler étant éliminé, on obtient en fonction de  $\omega$  des résonances centrées sur  $\omega = \omega_{ba}/2$  et dont la largeur est de l'ordre de la largeur atomique de la transition optique  $a \rightarrow b$ .

Lorsque  $J_a \neq J_b$  la somme sur  $k_1$  et  $k_2$  ne comprend qu'un terme:  $k_1 = k_2 = 2$ . Lorsque l'on balaye la fréquence du laser on observe donc sur toutes les grandeurs tensorielles une résonance lorentzienne d'absorption de largeur  $\Gamma_{ab}(2)$ .

Lorsque  $J_a = J_b$ , la somme comprend 4 termes (si la polarisation du champ électrique le permet):  $k_1 = k_2 = 0$ ;  $k_1 = k_2 = 2$ ;  $k_1 = 0$ ;  $k_2 = 2$  et  $k_1 = 2$ ,  $k_2 = 0$ . Dans les deux premiers termes n'intervient que la partie réelle de  $1/(\Gamma_{ab}(k_1) - i(\Gamma_{ba} - 2))$ : lorsque l'on balaye la fréquence  $\omega$  du laser, ces termes donnent lieu à des résonances de forme d'absorption de Lorentz de largeur  $\Gamma_{ab}(0)$  et  $\Gamma_{ab}(2)$ . La somme des deux termes où  $k_1 \neq k_2$  est proportionnelle à

$$(IV-12) \quad a^*(0,0,J_r) a(2,Q,J_r) (-)^{K+Q} \begin{pmatrix} 0 & 2 & K \\ 0 & -Q & Q \end{pmatrix} \left[ \frac{1}{\Gamma_{ab}(0) - i(\omega_{ba} - 2\omega)} + \frac{1}{\Gamma_{ab}(2) + i(\omega_{ba} - 2\omega)} \right]$$

$$+ a^*(2,-Q,J_r) a(0,0,J_r) (-)^K \begin{pmatrix} 2 & 0 & K \\ -Q & 0 & Q \end{pmatrix} \left[ \frac{1}{\Gamma_{ab}(2) - i(\omega_{ba} - 2\omega)} + \frac{1}{\Gamma_{ab}(0) + i(\omega_{ba} - 2\omega)} \right]$$

- si  $\Gamma_{ab}(2) = \Gamma_{ab}(0)$  on a évidemment encore une résonance de forme lorentzienne d'absorption.
- si la polarisation est linéaire (réelle) ou circulaire (imaginaire pure) on vérifie facilement que  $a^*(k,q,J_r) = (-)^q a(k,-q,J_r)$ ; les coefficients des deux termes ci-dessus sont égaux, et on a une résonance de forme d'absorption pure indépendamment de l'ordre tensoriel  $K$ . En choisissant convenablement la direction de l'axe de quantification, on peut

d'ailleurs toujours dans ce cas se ramener à une polarisation  $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$  ou  $\pi$  : soit  $e_p$  la composante non nulle de la polarisation ; (IV-10) s'écrit alors

$$(IV-13) \quad {}_b^{\rho} \langle 4 \rangle_K = 4n_a \frac{r_a^{\rho} r_b^{\rho}}{(\Delta\omega_r)^2} E^4 (-)^{J_a + J_b} \sum_{k_1 k_2} a(k_1 - 2p, J_r) a(k_2, -2p, J_r) \\ \sqrt{2k_1 + 1} \sqrt{2k_2 + 1} \sqrt{2K + 1} (-)^K \begin{Bmatrix} k_1 & k_2 & K \\ -2p & +2p & 0 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k_1 & k_2 & K \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix} \frac{2\Gamma_{ab}(k_1)}{(\Gamma_{ab}(k_1))^2 + (\omega_{ba} - 2\omega)^2}$$

Remarquons que lorsque la polarisation est circulaire ( $p = \pm 1$ ) on ne peut avoir que  $k_1 = k_2 = 2$ . Ceci était prévisible a priori puisque  $\Delta m = 1$  (ou  $-1$ ) à chaque absorption d'un photon. On a donc après absorption de deux photons  $\Delta m = \pm 2$ , transition qui ne peut être produite par un opérateur scalaire.

• Si la polarisation est quelconque (elliptique), on peut toujours choisir les axes de telle sorte que les  $e_p$  soient réels : alors  $a^*(k, q) = a(k, q)$ . Pour  $Q \neq 0$ , on trouve le complexe conjugué de chacun des termes de (IV-11) dans le développement de  ${}_b^{\rho} \langle K \rangle^* = (-)^Q {}_b^{\rho - Q} \langle K \rangle$ . Suivant les combinaisons de  ${}_b^{\rho} \langle K \rangle$  et  ${}_b^{\rho - Q} \langle K \rangle^*$  que l'on détecte (dans la lumière de fluorescence émise par le niveau  $b$ , par exemple) la contribution des termes  $k_1 \neq k_2$  correspond à un mélange d'absorption et de dispersion. On peut montrer que les coefficients des formes de dispersion de largeur  $\Gamma_{ab}(0)$  et  $\Gamma_{ab}(2)$  sont opposés. On doit donc s'attendre, lorsque  $\Gamma_{ab}(0) \neq \Gamma_{ab}(2)$  à observer une résonance dissymétrique sur les grandeurs "transversales" ( $Q \neq 0$ ). Lorsque  $Q=0$ , les coefficients des termes résonnants de la première et la deuxième ligne de (IV-12) sont égaux : on obtient donc la somme de deux formes d'absorption.

#### IV-1d Cas de plusieurs niveaux relais

Lorsque plusieurs niveaux sont susceptibles de jouer le rôle de niveau relai, il faut reprendre le calcul indiqué au § 1-c en remplaçant les cohérences optiques  $r_a^{\rho}$  et  $r_b^{\rho}$  par les sommes sur les niveaux relais  $\sum_r r_a^{\rho}$  et  $\sum_{r'} r_b^{\rho}$ , les deux sommations se faisant de manière indépendante. Nous nous limiterons ici au cas où  $\Gamma_{ab}(2) = \Gamma_{ab}(0) = \Gamma_{ab}$  et où la polarisation du laser est circulaire ou linéaire ( $p=0$  ou  $\pm 1$ ). Nous

écrivons l'amplitude des  $b^{\rho_0 K}$  à résonance ( $\omega_{ba} = 2\omega$ ). La formule (IV-13) devient alors

$$(IV-14) \quad {}^{(4)}_{b^{\rho_0 K}} = 8 n_a \frac{E^4}{\Gamma_{ab}} \sum_{k_1 k_2} (-)^k \sqrt{2k_1+1} \sqrt{2k_2+1} \sqrt{2K+1} \begin{bmatrix} k_1 & k_2 & K \\ -2p & 2p & 0 \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} k_1 & k_2 & K \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix}$$

$$\sum_r \frac{P_{ar} P_{rb}}{\Delta\omega_r} a(k_1, -2p, J_r) \sum_{r'} \frac{P_{ar'} P_{r'b}}{\Delta\omega_{r'}} a(k_2, -2p, J_{r'})$$

En particulier pour la population ( $K=0$ ) on obtient

- en polarisation circulaire ( $p = \pm 1$  donc  $k_1 = k_2 = 2$ )

$$(IV-15) \quad \sqrt{2J_b+1} {}^{(4)}_{b^{\rho_0 0}} = 8 n_a \frac{E^4}{\Gamma_{ab}} \left[ \sum_r \frac{P_{ar} P_{rb}}{\Delta\omega_r} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 2 \\ J_b & J_a & J_r \end{Bmatrix} \right]^2$$

- en polarisation linéaire

$$(IV-16) \quad \sqrt{2J_b+1} {}^{(4)}_{b^{\rho_0 0}} = 8 n_a \frac{E^4}{\Gamma_{ab}} \left[ \frac{1}{3} \left[ \sum_r \frac{P_{ar} P_{rb}}{\Delta\omega_r} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 0 \\ J_b & J_a & J_r \end{Bmatrix} \right]^2 + \frac{2}{3} \left[ \sum_r \frac{P_{ar} P_{rb}}{\Delta\omega_r} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 2 \\ J_b & J_a & J_r \end{Bmatrix} \right]^2 \right]$$

(Le premier terme n'intervient que si  $J_a = J_b$ )

Ces expressions montrent comment se produit l'interférence entre les effets des différents sous-niveaux relais. L'expression (IV-16) montre de plus que l'interférence intervient de manière complètement différente pour les termes correspondant à  $k=0$  et  $k=2$  : elle peut être constructive pour l'un et destructive pour l'autre.

#### IV-2 Cas où la transition étudiée a une structure hyperfine

##### IV-2a Composantes de la matrice densité dans les sous-niveaux hyperfins $F_b$

Nous supposons que la structure hyperfine est nettement supérieure à la

largeur de raie du laser et que toutes les composantes hyperfines sont résolues. La structure hyperfine reste cependant petite devant  $\Delta\omega_r$ . Nous cherchons les composantes de la matrice densité  $F_b \rho$  du sous-niveau hyperfin  $F_b$  après absorption de deux photons à  $F_b$  partir du sous-niveau  $F_a$ . Le calcul du paragraphe précédent est toujours valable à condition de remplacer  $J_a, J_b, J_r$  par  $F_a, F_b, F_r$  et de sommer les contributions correspondant aux différents sous-niveaux hyperfins  $F_r$  du niveau  $r$ .

Or, en utilisant les formules de transformation des éléments de matrice réduits (Messiah p. 926) et les propriétés des sommes de  $6J$ , on transforme facilement les termes qui interviennent à la 2ème ligne de (IV-14)

$$\begin{aligned}
 \text{(IV-17)} \quad & \sum_{F_r} P_{F_a F_r} P_{F_r F_b} \sqrt{2k+1} \begin{bmatrix} 1 & 1 & k \\ p & p & q \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & k \\ F_b & F_a & F_r \end{Bmatrix} \\
 & = P_{ar} P_{rb} (-)^{F_a+F_b-I} \sqrt{2F_a+1} \sqrt{2F_b+1} \begin{Bmatrix} J_a & k & J_b \\ F_b & I & F_a \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & k \\ J_b & J_a & J_r \end{Bmatrix} \begin{bmatrix} 1 & 1 & k \\ p & p & q \end{bmatrix} \sqrt{2k+1} \\
 & = P_{ar} P_{rb} (-)^{F_a+F_b-I} \sqrt{2F_a+1} \sqrt{2F_b+1} \begin{Bmatrix} J_a & k & J_b \\ F_b & I & F_a \end{Bmatrix} a(k, q, J_r)
 \end{aligned}$$

D'autre part, on a entre la population  $n_{F_a}$  d'un sous niveau Zeeman hyperfin de  $a$  et la population totale de  $a$ ,  $(2J_a+1)n_a^a$ , la relation

$$\text{(IV-18)} \quad (2I+1) (2J_a+1) n_{F_a} = (2J_a+1) n_a^a$$

A résonance, en polarisation circulaire ou linéaire, et lorsque  $\Gamma_{ab}(2) = \Gamma_{ab}(0) = \Gamma_{ab}$ , les grandeurs tensorielles créées dans le sous-niveau  $F_b$  s'écrivent

$$\text{(IV-19)} \quad \rho_{F_b 0}^{(4)K} = 8 \frac{n_a}{2I+1} \frac{P_{ar}^2 P_{rb}^2}{(\Delta\omega_r)^2} \frac{E^4}{\Gamma_{ab}} (-)^{F_a+F_b+K} (2F_a+1)(2F_b+1) \sqrt{2K+1}$$

$$\begin{aligned}
 & \sum_{k_1, k_2} a(k_1, -2p, J_r) a(k_2, -2p, J_r) \begin{Bmatrix} J_a & k_1 & J_b \\ F_b & I & F_a \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J_a & k_2 & J_b \\ F_b & I & F_a \end{Bmatrix} \\
 & \sqrt{2k_2+1} \sqrt{2k_1+1} \begin{bmatrix} k_1 & k_2 & K \\ -2p & 2p & 0 \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} k_1 & k_2 & K \\ F_b & F_b & F_a \end{Bmatrix}
 \end{aligned}$$

où  $a(k, q, J_r)$  est donné par (IV-8).

a) Population

◆ en polarisation circulaire ,  $p = \pm 1$  et  $k_1 = k_2 = 2$ ; (IV-19) s'écrit :

$$(IV-20) \quad \sqrt{2F_b+1} \begin{matrix} L \\ (4) \\ F_b \end{matrix} \rho_0^0 = 8 \frac{n_a}{2I+1} \frac{P_{ar}^2 P_{rb}^2}{(\Delta\omega_r)^2} \frac{E^4}{\Gamma_{ab}} (2F_a+1)(2F_b+1)$$

$$\left\{ \begin{matrix} 1 & 1 & 2 \\ J_b & J_a & J_r \end{matrix} \right\}^2 \left\{ \begin{matrix} J_a & 2 & J_b \\ F_b & I & F_a \end{matrix} \right\}^2$$

$F_b \rho_0^0$  s'exprime en fonction de la population créée dans les mêmes conditions dans le niveau b de l'isotope pair (en supposant les populations totales égales dans le niveau a).

$$(IV-21) \quad \sqrt{2F_b+1} \begin{matrix} (4) \\ F_b \end{matrix} \rho_0^0 = \frac{\sqrt{2J_b+1} \begin{matrix} (4) \\ b \end{matrix} \rho_0^0}{2I+1} (2F_a+1) (2J_b+1) \left\{ \begin{matrix} J_a & 2 & J_b \\ F_b & I & F_a \end{matrix} \right\}^2$$

Les intensités en absorption des différentes composantes hyperfines de la transition sont donc très simplement reliées entre elles. En fait, nous observons la fluorescence émise perpendiculairement à la direction de propagation du laser ; le signal dépend donc également de l'alignement  $F_b \rho_0^2$  (cf § (8) suivant).

◆ en polarisation linéaire

$k_1$  et  $k_2$  peuvent maintenant prendre les valeurs 0 et 2

$$(IV-22) \quad \sqrt{2F_b+1} \begin{matrix} (4) \\ F_b \end{matrix} \rho_0^0 = 8 \frac{n_a}{2I+1} \frac{P_{ar}^2 P_{rb}^2}{(\Delta\omega_r)^2} \frac{E^4}{\Gamma_{ab}} (2F_a+1) (2F_b+1)$$

$$\left[ \frac{1}{3} \left\{ \begin{matrix} 1 & 1 & 0 \\ J_b & J_a & J_r \end{matrix} \right\}^2 \left\{ \begin{matrix} J_a & 0 & J_b \\ F_b & I & F_a \end{matrix} \right\}^2 + \frac{2}{3} \left\{ \begin{matrix} 1 & 1 & 2 \\ J_b & J_a & J_r \end{matrix} \right\}^2 \left\{ \begin{matrix} J_a & 2 & J_b \\ F_b & I & F_a \end{matrix} \right\}^2 \right]$$

Le terme correspondant à  $k=0$  n'intervient ici que sur les composantes hyperfines telles que  $F_a = F_b$  des transitions  $J_a = J_b$ .

◆ cas de plusieurs niveaux relais

Lorsque plusieurs niveaux sont susceptibles de jouer le rôle de niveau relais, il faut remplacer, comme dans (IV-15) et (IV-16)

$$\frac{P_{ar} P_{rb}}{\Delta\omega_r^2} \left\{ \begin{array}{ccc} 1 & 1 & k \\ J_b & J_a & J_r \end{array} \right\}^2 \quad \text{par} \quad \left| \sum_r \frac{P_{ar} P_{rb}}{\Delta\omega_r} \left\{ \begin{array}{ccc} 1 & 1 & k \\ J_b & J_a & J_r \end{array} \right\} \right|^2$$

dans (IV-20) et (IV-22).

On voit que dans le cas d'une polarisation circulaire (IV-20) l'interférence affecte de la même manière les différentes composantes hyperfines ; les intensités relatives sont toujours données par l'expression (IV-21) . Lorsque la polarisation est linéaire et que  $J_a = J_b$  , les intensités relatives des composantes hyperfines  $F_a \rightarrow F_b$  avec  $F_a \neq F_b$  restent les mêmes que dans le cas d'un seul niveau relais ; par contre, sur les composantes hyperfines  $F_a \rightarrow F_b$  avec  $F_a = F_b$  interviennent à la fois les sommes sur r correspondant à  $k=0$  et à  $k=2$ . Leurs intensités peuvent donc être entièrement différentes de celles que l'on observerait dans le cas d'un seul sous-niveau relais. Cet effet a été observé sur les transitions  $3s [3/2] 2 \rightarrow 4d' [3/2] 2$  et  $3s [3/2] 2 \rightarrow 4d' [5/2] 2$  du  $^{21}\text{Ne}$  (cf § VI-2) . Il est traité en détail dans la référence [ 68 ]

β) Alignement

En polarisation circulaire, on n'a ici encore que le terme  $k_1 = k_2 = 2$  de l'expression (IV-19) . En polarisation linéaire avec  $J_a = J_b$  interviennent de plus les termes correspondant à  $k_1 = 0, k_2 = 2$  et  $k_1 = 2, k_2 = 0$  . On obtient :

◆ polarisation circulaire  $e_p = e_{\pm 1}$

$$(IV-23) \quad \frac{(4)}{F_b} \rho_0^2 = \frac{8n_a}{2I+1} \frac{P_{ar} P_{rb}}{(\Delta\omega_r)^2} \frac{E^4}{\Gamma_{ab}} \left[ (-)^{F_a+F_b} (5\sqrt{\frac{2}{7}}) (2F_a+1) (2F_b+1) \right]$$

$$\left\{ \begin{array}{ccc} 1 & 1 & 2 \\ J_b & J_a & J_r \end{array} \right\}^2 \left\{ \begin{array}{ccc} J_a & 2 & J_b \\ F_b & I & F_a \end{array} \right\}^2 \left\{ \begin{array}{ccc} 2 & 2 & 2 \\ F_b & F_b & F_a \end{array} \right\}$$

♦ polarisation linéaire  $e_p = e_0$

$$(IV-24) \quad \rho_{F_b 0}^{(4)} = 8 \frac{n_a}{2I+1} \frac{P_{ar}^2 P_{rb}^2}{(\Delta\omega_r)^2} \frac{E^4}{I_{ab}}$$

$$\left[ \begin{aligned} & (-)^{F_a + I + 2J_b + J_r} \frac{2\sqrt{2}}{3\sqrt{3}} \frac{2F_a + 1}{2J_b + 1} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 2 \\ J_b & J_a & J_r \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J_a & 2 & J_b \\ F_b & I & F_a \end{Bmatrix} \delta_{J_a J_b} \delta_{F_a F_b} \\ & - (-)^{F_a + F_b} \frac{10\sqrt{2}}{3\sqrt{7}} (2F_a + 1)(2F_b + 1) \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 2 \\ J_b & J_a & J_r \end{Bmatrix}^2 \begin{Bmatrix} J_a & 2 & J_b \\ F_b & I & F_a \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 2 & 2 & 2 \\ F_b & F_b & F_a \end{Bmatrix} \end{aligned} \right]$$

#### IV-2b Intensité de la fluorescence observée

L'alignement créé dans les différents sous-niveaux  $F_b$  n'étant pas proportionnel à la population, l'intensité des résonances à deux photons, détectées sur la lumière de fluorescence émise perpendiculairement au faisceau laser (observée sans polariseur), n'est pas donnée par les formules (IV-21) et (IV-22), mais s'exprime également en fonction de (IV-23) et (IV-24).

En effet, l'opérateur de détection  $\mathcal{D}_{F_b}$  décrivant la fluorescence émise sur l'ensemble des transitions partant de  $F_b$  vers les différents sous-niveaux hyperfins d'un même niveau  $c$  (moment cinétique  $J_c$ ) s'écrit, en utilisant (II-10)

$$(IV-25) \quad \mathcal{D}_{F_b} = \frac{3\gamma_{bc}}{8\pi} (2J_b + 1) (-)^{2J_b + J_c + F_b + I} (2F_b + 1)$$

$$\sum_{k,q} (-)^k \begin{Bmatrix} J_b & k & J_b \\ F_b & I & F_b \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k & 1 & 1 \\ J_c & J_b & J_b \end{Bmatrix} F_b F_b T_q^k \sum_{pp'} (-)^p e'_{-p} e'_{p'}^* \langle 1 \ 1 \ p' \ p \ | \ k \ q \rangle$$

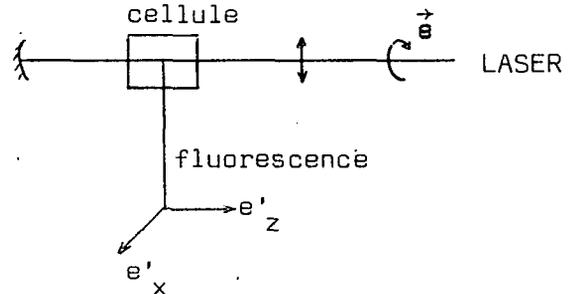
d'où l'intensité de la fluorescence  $I = \text{Tr } \rho \mathcal{D}$

$$(IV-26) \quad I = \frac{3\gamma_{bc}}{8\pi} (2J_b+1) (2F_b+1) (-)^{2J_b+J_c+F_b+I}$$

$$\sum_{kq} \left\{ \begin{matrix} J_b & k & J_b \\ F_b & I & F_b \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} k & 1 & 1 \\ J_c & J_b & J_b \end{matrix} \right\} F_b \rho_q^k \sum_{pp'} (-)^p e'_p e'_{p'} \sqrt{2k+1} \begin{pmatrix} 1 & 1 & k \\ -p & p' & q \end{pmatrix}$$

Lorsque le laser est de polarisation circulaire, nous prenons l'axe de quantification suivant la direction de propagation du laser,  $Oz$  ; si on détecte la fluorescence perpendiculairement à  $Oz$ , sans polariseur, on observe donc la somme des intensités correspondant aux polarisations suivant  $Oz$  et  $Ox$  ( $\pi$  et  $\sigma$ ) soit :

$$\begin{cases} e'_0 = 1 \\ e'_1 = 0 \\ e'_{-1} = 0 \end{cases} \quad \text{et} \quad \begin{cases} e'_0 = 0 \\ e'_1 = 1/\sqrt{2} \\ e'_{-1} = -1/\sqrt{2} \end{cases}$$



Compte tenu du fait que la matrice densité n'a que des composantes de  $q=0$  l'intensité totale observée est :

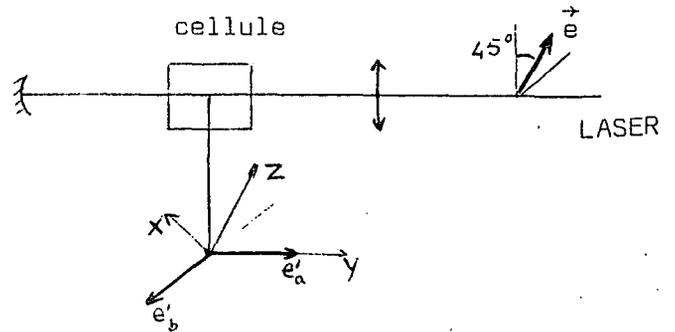
$$(IV-27) \quad I = \frac{3\gamma_{bc}}{8\pi} \left[ \frac{2}{3} \sqrt{2F_b+1} F_b \rho_0^0 + \frac{1}{\sqrt{6}} (2J_b+1)(2F_b+1) (-)^{2J_b+J_c+F_b+I} \right]$$

$$\left\{ \begin{matrix} J_b & 2 & J_b \\ F_b & I & F_b \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} 2 & 1 & 1 \\ J_c & J_b & J_b \end{matrix} \right\} F_b \rho_0^2$$

(il est bien connu que l'orientation ne peut être observée dans cette géométrie).

Lorsque le laser est de polarisation linéaire, nous avons pris l'axe de quantification suivant la polarisation du laser ; si l'on détecte la fluorescence à  $45^\circ$  de la direction de polarisation du laser sans polariseur, on observe la somme des intensités correspondant aux polarisations suivant  $Ox$  et  $Oy$  soit :

$$\epsilon'_b \begin{cases} e'_0 = -1/\sqrt{2} \\ e'_1 = 1/2 \\ e'_{-1} = -1/2 \end{cases} \quad \epsilon'_a \begin{cases} e'_0 = 0 \\ e'_1 = 1/\sqrt{2} \\ e'_{-1} = 1/\sqrt{2} \end{cases}$$



L'intensité totale observée est :

$$(IV-28) \quad I = \frac{3\gamma_{bc}}{8\pi} \left[ \frac{2}{3} \sqrt{2F_b+1} F_b \rho_0^0 - \frac{1}{2\sqrt{2}\sqrt{3}} (2J_b+1) (2F_b+1) (-)^{2J_b+J_c+F_b+I} \right. \\ \left. \begin{matrix} \left\{ \begin{matrix} J_b & 2 & J_b \\ F_b & I & F_b \end{matrix} \right\} & \left\{ \begin{matrix} 2 & 1 & 1 \\ J_c & J_b & J_b \end{matrix} \right\} & F_b \rho_0^2 \end{matrix} \right]$$

Remarque :

Contrairement à l'excitation, la détection se fait en raie large, et est sensible aux grandeurs éventuellement créées dans les autres sous-niveaux hyperfins de b. Les expressions ci-dessus ne sont donc valables que tant que les transferts de population et d'alignement entre sous-niveaux hyperfins différents, dus aux collisions, restent faibles, c'est-à-dire lorsque la relaxation due à l'émission spontanée est dominante.

Dans le cas opposé où les collisions dépolarisantes sont très importantes devant les collisions de quenching et l'émission spontanée, l'alignement disparaît très rapidement, et la population créée dans un sous-niveau hyperfin particulier  $F_b$  se répartit entre les différents sous-niveaux hyperfins suivant leurs poids statistiques ref [14] § IV B 1). L'intensité de la fluorescence observée dépend alors de la population  $F_b \rho_0^0$  seule.

En fait nous verrons au chapitre VI que les coefficients numériques de (IV-28) sont tels que la contribution de l'alignement aux intensités de fluorescence observées est faible ; nous ne pouvons donc pas trancher entre les deux hypothèses ci-dessus. Finalement, l'intensité relative des composantes hyperfines donnée par les expressions du § 2a(α) peut être considérée comme un bon ordre de grandeur, compte tenu de la précision expérimentale.

## Chapitre V

LES EXPERIENCES DE CROISEMENTS DE NIVEAUX ET DE DOUBLE RESONANCE ET LES  
RESULTATS SPECTROSCOPIQUES.V-1 Le montage expérimental

Le montage expérimental que nous avons construit était à l'origine inspiré de ceux qu'avaient mis au point B. DECOMPS, M. DUMONT [ <sup>41</sup> ] et M. DUCLOY pour l'étude de l'effet Hanle en pompage optique laser : entre deux miroirs à multicouches diélectriques sont disposés une cellule contenant le gaz étudié (néon ou mélange hélium-néon), soumis à une décharge et un long tube amplificateur à Hélium-néon assurant l'oscillation laser. La cellule est placée entre deux bobines de Helmholtz qui produisent un champ magnétique axial balayable de -100 Gs à + 100 Gs. La lumière de fluorescence émise par la cellule perpendiculairement au champ magnétique est détectée par un système de monochromateurs et photomultiplicateurs.

Outre ces éléments, notre dispositif comporte une deuxième paire de bobines de Helmholtz beaucoup plus volumineuses, capables de produire un champ magnétique de 2000 Gs, et une cavité radiofréquence accordable ; ceci nous permettait de faire des expériences de résonance magnétique et de croisements de niveaux.

Avec l'apparition sur le marché de lasers à colorants fournissant d'importantes puissances lumineuses, principalement dans le jaune et le rouge, il s'est avéré que nous pouvions disposer d'un instrument extrêmement puissant pour l'étude de beaucoup de niveaux du néon. Le laser à Hélium-Néon a alors été remplacé par un laser à rhodamine 6G pompé par un laser à Argon ionisé. Le dispositif expérimental est schématisé sur les figures (V-1) et (V-2) dans le cas des deux utilisations que nous en avons faites : expériences de croisements de niveaux et expériences de résonance magnétique. Nous décrivons dans la suite les principaux éléments du montage.



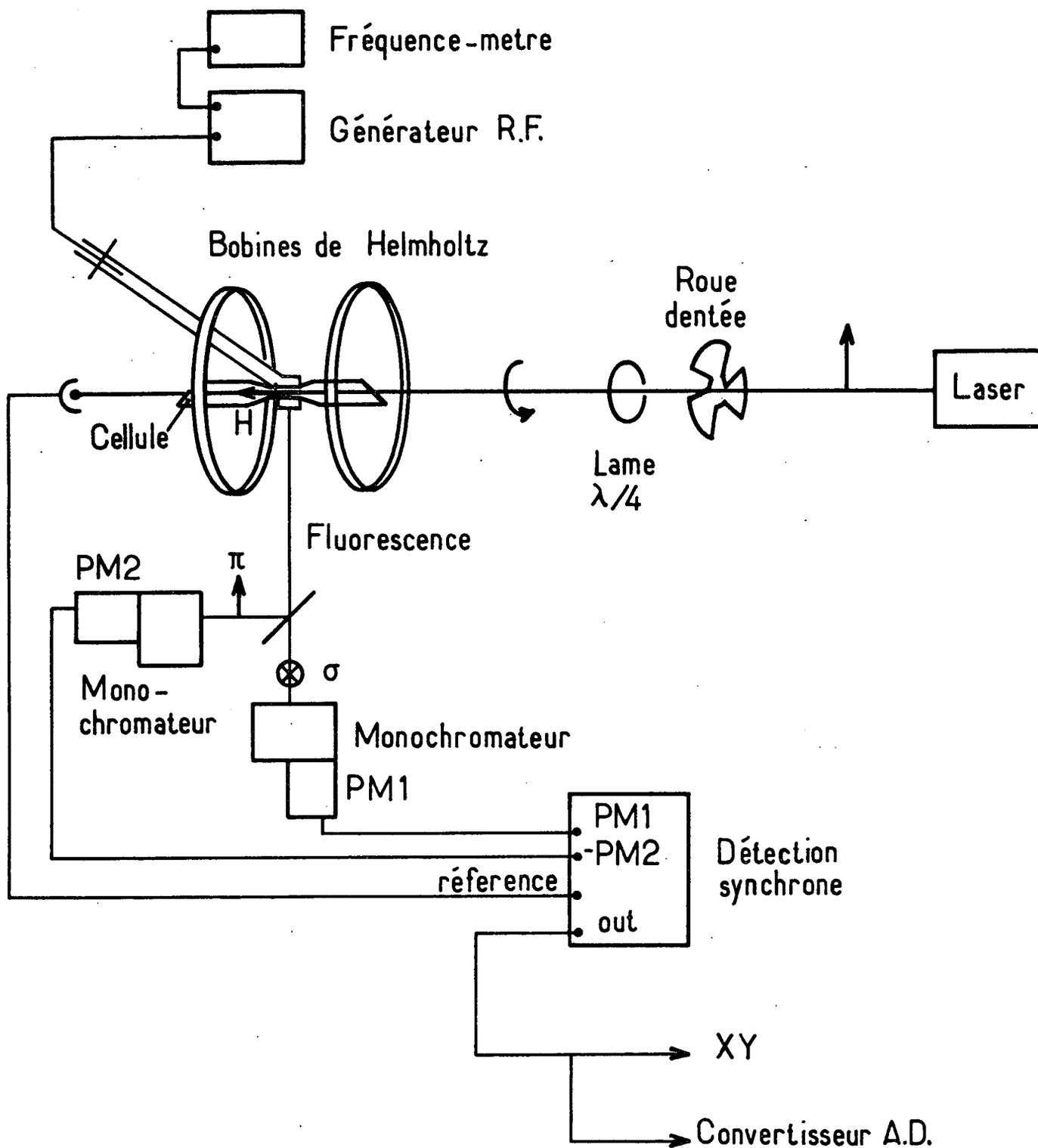


Figure V-2 : Dispositif expérimental pour l'étude de la résonance magnétique.

### V-1-a La cellule

La cellule est en pyrex , de forme tubulaire . Les fenêtres d'entrée et de sortie de la lumière laser sont des disques de quartz collés sur le pyrex. Elles sont inclinées à l'angle de Brewster (pour la polarisation du laser). En raison de la grande épaisseur des bobines de Helmholtz entourant la cellule, nous avons dû donner à celle-ci une longueur d'environ 50 cm pour pouvoir nettoyer commodément les fenêtres. Leur état de propreté a en effet une influence critique sur le fonctionnement du laser lorsque la cellule est à l'intérieur de sa cavité. Egal à 15 mm aux extrémités, le diamètre de la cellule est réduit à 3 mm dans la partie centrale , sur une longueur de 5 cm ; le diamètre est alors sensiblement égal au diamètre du faisceau laser.

C'est dans la partie centrale seule qu'est localisée la décharge . Nous avons employé, soit une décharge continue entretenue par des électrodes internes reliées aux bornes d'une alimentation haute tension stabilisée (Fluke 412 B), soit une décharge haute fréquence produite par des électrodes externes. La première technique est intéressante lorsque l'on désire peupler fortement les niveaux excités sans avoir à mettre en place un blindage pour la HF ; la seconde est plus souple et permet d'obtenir des niveaux de décharge très faibles (décharge à peine visible) en particulier lorsque l'on veut éliminer certains effets parasites liés à une trop grande population des niveaux métastables (cf § 2 a( $\beta$ )). On observe la fluorescence émise par la partie centrale de la cellule , sur une longueur de 2 cm.

La cellule est reliée à un banc de pompage et de remplissage ; nous disposons des 3 isotopes stables  $^{20}\text{Ne}$ ,  $^{21}\text{Ne}$  et  $^{22}\text{Ne}$  et d'hélium. La pression est mesurée à l'aide d'une jauge à mercure de type Mac-Leold.

### V-1-b Les lasers

Comme nous l'avons indiqué plus haut, deux types de laser ont été utilisés : laser à hélium-néon puis laser à colorant.

a) Le laser à hélium-néon

Le tube laser (Spectra-Physics) contient un mélange d'hélium et de néon. Le néon habituellement utilisé est du néon naturel (92%  $^{20}\text{Ne}$ , 8%  $^{22}\text{Ne}$ ), mais nous avons également employé un tube contenant du  $^{22}\text{Ne}$ ; pour l'étude des croisements dans le niveau  $3s_2$ , nous obtenions ainsi une meilleure coïncidence entre la raie de pompage et les composantes hyperfines utiles de la raie d'absorption.

Le faisceau laser est polarisé rectilignement par les fenêtres du tube, inclinées à l'angle de Brewster. La longueur d'onde sur laquelle se produit l'oscillation laser est sélectionnée par les miroirs multicouches diélectriques. Nous avons utilisé les deux raies suivantes :  $6328 \text{ \AA}$  ( $3s_2 \leftrightarrow 2p_4$ ) et  $7305 \text{ \AA}$  ( $3s_2 \leftrightarrow 2p_1$ ), respectivement pour l'étude des niveaux  $2p_4$  et  $3s_2$ . Pour éviter l'oscillation sur la raie  $3,39 \mu$  ( $3s_2 \leftrightarrow 3p_4$ ) qui peut se produire quel que soit le choix des miroirs à cause du gain très élevé à cette longueur d'onde, on intercale sur le trajet du faisceau laser, dans les intervalles libres de la cavité des réservoirs à méthane, gaz présentant une bande d'absorption autour de  $3,39 \mu$ . Le coefficient de réflexion des miroirs, situés de part et d'autre de l'ensemble tube laser + cellule, est dit "R max" ( $\geq 99,8 \%$ )

On obtient ainsi, à l'intérieur de la cavité des puissances lumineuses qui sont de l'ordre de plusieurs  $\text{W/cm}^2$ , ce qui permet un pompage optique même entre deux niveaux excités radiatifs. Pour permettre une détection synchrone de la lumière de fluorescence, on module l'intensité du laser en créneaux carrés à une fréquence de 130 Hz à l'aide d'une roue dentée.

Le montage présente un inconvénient important : le contrôle de l'intensité laser est difficile. Pour diminuer l'intensité on utilise un diaphragme qui obture partiellement le faisceau laser; comme ce diaphragme est placé dans la partie de la cavité la plus éloignée de la cellule, il modifie assez peu le diamètre du faisceau laser au niveau de la cellule; cependant par suite de l'augmentation des pertes ainsi introduites par rapport au gain de la cavité, le nombre de modes capables d'osciller décroît; il est impossible de séparer les variations de l'intensité et les variations de la largeur du spectre de la lumière de

pompage.

D'autre part on ne peut étudier ainsi que les niveaux des transitions laser, la méthode de transfert par émission spontanée [56] étant par principe même inapplicable dans le cas des croisements de niveaux, et conduisant à des taux de polarisation trop faibles pour la résonance magnétique.

### β) Le laser à colorant

Le laser à colorant (schématisé sur la figure V-3) est un laser à jet stream Cohérent Radiation (modèle 490), fonctionnant ici avec la Rhodamine 6G. Il est pompé par un laser à Argon (CR 8). Pour éviter les fluctuations d'intensité dues aux poussières et aux variations d'indice de l'air provoqués par les courants d'air, nous avons placé le laser à colorant dans une boîte en plexiglass entièrement fermée.

La sélection de longueur d'onde est faite dans la cavité en tournant dans leur plan un ensemble de trois lames biréfringentes inclinées à l'angle de Brewster sur le faisceau laser ; ce filtre est malheureusement très sensible aux variations de température et il en résulte une importante dérive de la longueur d'onde au cours de la journée. Les longueurs d'onde que nous avons utilisées pour pomper optiquement les niveaux de la configuration  $2p^53p$  à partir de ceux de la configuration  $2p^53s$  sont reportées dans le tableau suivant :

---

$2p_2$	$2p_4$	$2p_5$
○ 6030 Å ( $2p_2-1s_4$ )	○ 5944 Å ( $2p_4-1s_5$ )	○ 6266 Å ( $2p_5-1s_3$ )
○ 6163 Å ( $2p_2-1s_3$ )	○ 6096 Å ( $2p_4-1s_4$ )	
$2p_6$	$2p_7$	$2p_8$
○ 6143 Å ( $2p_6-1s_5$ )	○ 6383 Å ( $2p_7-1s_4$ )	○ 6334 Å ( $2p_8-1s_5$ )

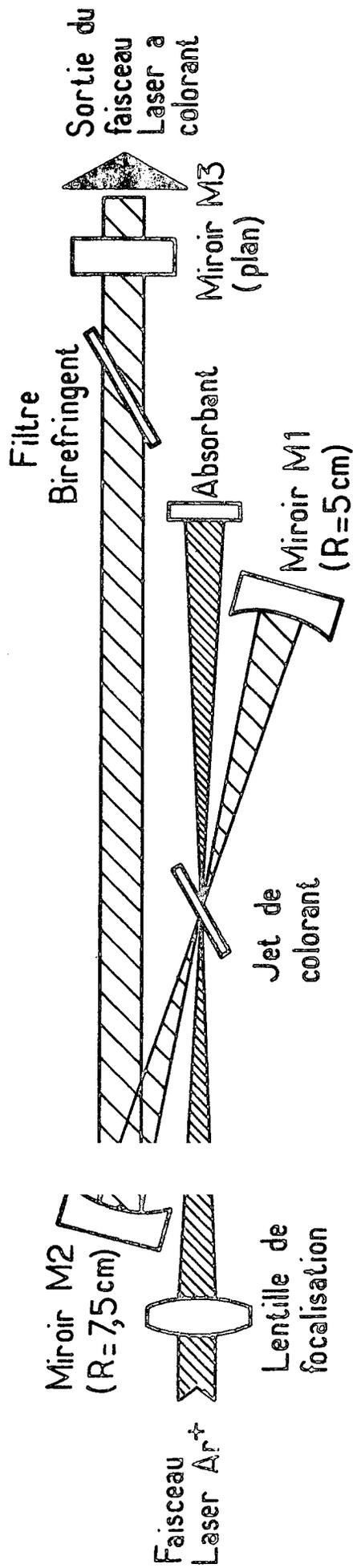


Figure V-3 : laser à colorant

La largeur du spectre émis par le laser muni du filtre biréfringent est comprise entre 10 et 50 GHz suivant la puissance de sortie. Le tableau ci-dessous en donne quelques ordres de grandeur, obtenus en analysant la lumière du laser avec un Fabry - Perot plan à cales piézo-électriques.

P sortie $\lambda$	15 mW	50 mW	100 mW	500 mW	1000 mW
6200 Å	15 GHz	25 GHz	30 GHz	75 GHz	
6000 Å	15 GHz	20 GHz	30 GHz	70 GHz	80 GHz
5800 Å	15 GHz	20 GHz	30 GHz	75 GHz	

Les largeurs reportées dans ce tableau sont les distances en fréquence entre les modes extrêmes du spectre. La comparaison entre les résultats obtenus à diverses longueurs d'onde et diverses puissances de pompe (en dérégulant légèrement le laser à colorant pour conserver la même puissance de sortie) montre que la largeur du spectre est principalement liée à la puissance de sortie du laser à colorant. La puissance est mesurée à l'aide du "powermeter" (model 210) Coherent Radiation.

La longueur totale de la cavité du laser est 45 cm, si bien que l'écart entre modes est 330 MHz. Il y a donc peu de modes dans la largeur Doppler d'une raie d'absorption du néon (environ 2000 MHz); le signal de fluorescence observé sur la cellule éclairée par un tel faisceau laser est alors très sensible à la dérive de fréquence et aux fluctuations d'intensité des modes. Nous avons pu réduire cet effet en allongeant la cavité à 1m. Pour conserver le fonctionnement sur le mode TEM<sub>00</sub>, nous avons alors dû changer de rayon du miroir de sortie (le calcul de la cavité du laser à colorant est détaillé dans l'Appendice II).

Le faisceau du laser à colorant est aligné directement sur la cellule, ce qui permet les expériences avec cellule à l'extérieur comme à l'intérieur de la cavité. Pour les expériences que nous présentons ici, la puissance de sortie du laser à colorant équipé d'un miroir de coefficient de transmission 4% était largement suffisante, et nous n'avons pas utilisé

la deuxième possibilité du montage. Le contrôle de l'intensité lumineuse se fait dans ce cas de manière indépendante de la largeur du spectre d'émission à l'aide de lames atténuatrices étalonnées placées devant la cellule. Pour l'étude des croisements de niveaux nous avons utilisé directement le faisceau polarisé rectilignement issu du laser. Pour les expériences de résonance magnétique il est préférable, comme nous le verrons plus loin (cf § 3 a( $\alpha$ )), d'utiliser un pompage optique en polarisation circulaire; nous interposons alors une lame quart d'onde sur le trajet du faisceau. L'intensité du laser est hachée à la fréquence de 280 Hz par une roue dentée entraînée par une turbine à air comprimé.

#### V-1-c Les champs magnétiques

##### a) Le champ magnétique statique

Deux bobines de Helmholtz alimentées sous basse tension par une alimentation Varian (V 2503) produisent un champ magnétique parallèle au faisceau laser, ajustable entre -2000 Gs et + 2000 Gs. Le champ a été homogénéisé à l'aide d'une résonance de protons; sur le volume observé de la cellule l'homogénéité du champ magnétique est de l'ordre de  $10^{-5}$ . Le montage ne permet pas de laisser la sonde à résonance de protons dans les bobines durant les expériences; aussi mesurons-nous le courant qui passe dans les bobines à l'aide d'un pont de mesure Hewlett Packard (3420 B). La calibration, qui présente une dérive de l'ordre de  $10^{-4}$  sur une période de quelques mois, est refaite avant et après chaque série de mesures. Comme la cellule n'est pas mobile, la sonde est placée le plus près d'elle possible; la correction à faire sur le champ magnétique ainsi mesuré a été déterminée avant la mise en place de la cellule; elle est négligeable à la précision dont nous avons besoin (qui est de l'ordre de  $10^{-4}$ ).

Le champ magnétique est balayé autour d'une valeur déterminée par le courant dans les grosses bobines à l'aide de bobines auxiliaires alimentées soit par un générateur TBF (Tekelec TE 500 A) soit par un générateur

de "marches" de tension (construit au laboratoire) ; le premier dispositif est utilisé pour les enregistrements analogiques continus du signal , le second est mieux adapté à la digitalisation du signal en vue de l'enregistrement sur bande perforée.

En général nous nous efforçons de centrer au mieux le champ magnétique principal sur le signal étudié si bien qu'il n'est pas nécessaire de déterminer avec une grande précision la calibration des bobines de balayage.

### B) Le champ magnétique oscillant

En vue des expériences de résonance magnétique nous avons construit une ligne résonnante de type "fils de Lecher" (cf fig V-4), constituée par deux bandes de cuivre argenté de 2cm de hauteur et 5mm d'épaisseur. La ligne se referme sur des court circuits . Le court-circuit initial est constitué par une plaque de cuivre mobile ; entraînée par une tige filetée , elle peut coulisser sur les bandes de cuivre argenté. Elle porte la boucle d'excitation alimentée par un générateur RF (Prana C 203). Le court circuit terminal est placé au niveau du centre de la cellule. Celle-ci se trouve donc sur un maximum de champ magnétique et un minimum de champ électrique. Cependant le champ électrique est encore assez important pour allumer dans la cellule une décharge assez intense.

Le générateur RF peut fournir une puissance de 100 W entre 200 et 1000 MHz . On peut accorder la ligne dans cette même gamme de fréquence en l'utilisant en mode onde ou demi-onde. Avec quelques dizaines de Watt , on obtient des champs magnétiques de plusieurs gauss au niveau de la cellule. Un tel ordre de grandeur est en effet nécessaire pour observer un signal de résonance magnétique sur des niveaux excités de courte durée de vie ( $\sim 10$  ns).

### V-1-d La détection

Notre dispositif permet de détecter la lumière de fluorescence dans deux directions perpendiculaires au faisceau laser : parallèlement et

## Vue de dessus

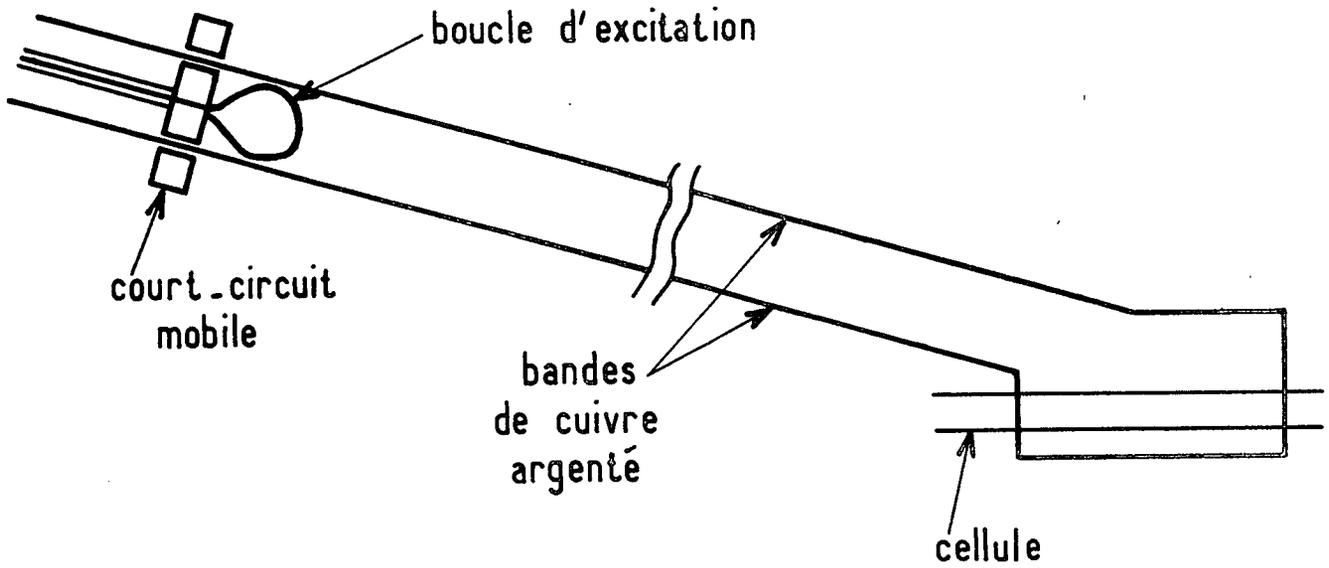
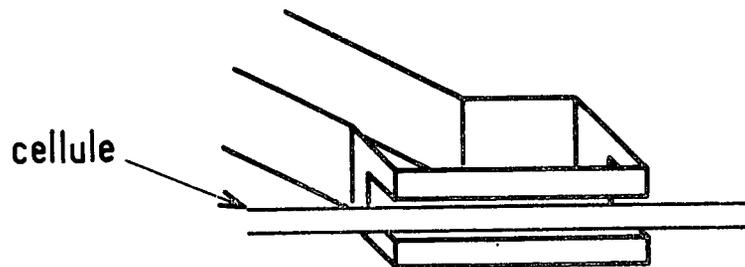
Vue en perspective du  
court-circuit final

Figure V-4 : La cavité résonnante pour le champ de radiofréquence.

perpendiculairement à la polarisation du laser. A l'aide de systèmes de lentilles et de miroirs on forme des images de la cellule sur les fentes d'entrée de deux monochromateurs (Jarell Ash 82-410) , suivis de photomultiplicateurs (EMI 9558 QB). Des polariseurs peuvent être interposés sur le trajet des faisceaux lumineux.

Pour étudier les croisements de niveaux, on détecte la lumière de fluorescence sur la même raie dans les deux directions, en polarisation  $\sigma$  , et on oppose les signaux obtenus sur les deux voies ; nous pouvons ainsi isoler la partie de la lumière de fluorescence proportionnelle aux grandeurs transversales qui nous intéressent (cf § II-1b).

Pour observer les raies de résonance magnétique, on utilise une seule direction d'observation , et à l'aide d'une lame semi-transparente on sépare le faisceau en deux parties que l'on détecte avec la polarisation  $\sigma$  et  $\pi$ . En opposant les signaux donnés sur la même raie par les deux photomultiplicateurs , on éliminera une partie du fond continu.

Le signal de sortie des photomultiplicateurs est amplifié par une détection synchrone (PAR HR8 ) à la fréquence de modulation du laser. La sortie de la détection synchrone peut être traitée de deux façons.

- soit on balaye le champ magnétique de manière continue et on enregistre la lumière de fluorescence en fonction du champ magnétique avec un enregistreur XY
- soit on fait varier le champ magnétique par marches discrètes et un système de convertisseur analogique-digital, sérialiseur et perforatrice permet d'enregistrer sur bande perforée les amplitudes du champ magnétique et du signal de fluorescence sur chaque marche. La courbe correspondante est ensuite traitée sur ordinateur.

## V-2 Les expériences de croisement de niveaux hyperfins

Comme nous l'avons indiqué au cours de la description du montage expérimental, les croisements entre sous-niveaux hyperfins d'un même niveau de structure fine  $\alpha J$  sont excités par le faisceau laser de polarisation

rectiligne perpendiculaire au champ magnétique ; on les détecte au moyen de la lumière de fluorescence émise à partir du niveau  $\alpha J$  vers un niveau  $\alpha' J'$  observée en raie large, dans les deux directions parallèle et perpendiculaire à la polarisation du laser, avec la polarisation  $\sigma$ . On sait (§ II-1-b) que les croisements  $\Delta m=2$  donnent alors lieu, lorsque l'on balaye le champ magnétique, à un signal de forme d'absorption de Lorentz, apparaissant avec des signes opposés sur les deux voies de détection. En opposant ces deux signaux on isole donc la partie de la lumière de fluorescence résonnante dans le champ du croisement de niveaux. On ne peut pas détecter les croisements de  $\Delta m = 1$  dans cette géométrie.

Parmi les niveaux que nous avons étudiés, certains ont un moment cinétique électronique  $J=1$ , les autres ont un  $J=2$ . On vérifie sur les figures (II-1) et (II-2) que lorsque  $I=3/2$  il apparaît 2 croisements de  $\Delta m=2$  dans les diagrammes des niveaux de  $J=1$ , 7 croisements de  $\Delta m=2$  dans les diagrammes des niveaux de  $J=2$ . (Le diagramme de la figure (II-1) est tracé dans l'hypothèse où la constante hyperfine quadrupolaire électrique  $B=0$ , mais le nombre de croisements n'est pas modifié lorsque  $B$  n'est pas trop grand).

Les deux croisements des niveaux de  $J=1$  sont de largeurs et d'intensités très différentes, le calcul des pentes des sous-niveaux et des fonctions d'onde correspondantes permet de montrer que l'un d'eux,  $C_1$  ( $F=5/2$ ,  $m_F=5/2$ ;  $f=3/2$ , <sup>(note \*)</sup>  $m_F=1/2$ ) donne lieu à une lorentzienne 21 fois plus intense et 7 fois moins large que l'autre,  $C_2$  ( $f=3/2$ ,  $m_F=1/2$ ;  $f=3/2$ ,  $m_F=-1/2$ ). Pour étudier la position des croisements  $C_2$  nous avons dû intégrer le signal plusieurs heures dans un analyseur multicanaux. Dans les niveaux de  $J=2$ , six des sept croisements sont d'intensité et de largeur comparables (à un facteur 1,5 près environ). Le septième était beaucoup moins intense que les autres et nous ne l'avons pas étudié. Les figures (V-5), (V-6) et (V-7) donnent des exemples de signaux de croisements. Les champs magnétiques dans lesquels se produisent tous ces croisements sont compris entre quelques dizaines et quelques centaines de Gauss.

---

\* )  $f$  a été défini au § I-2a.

---

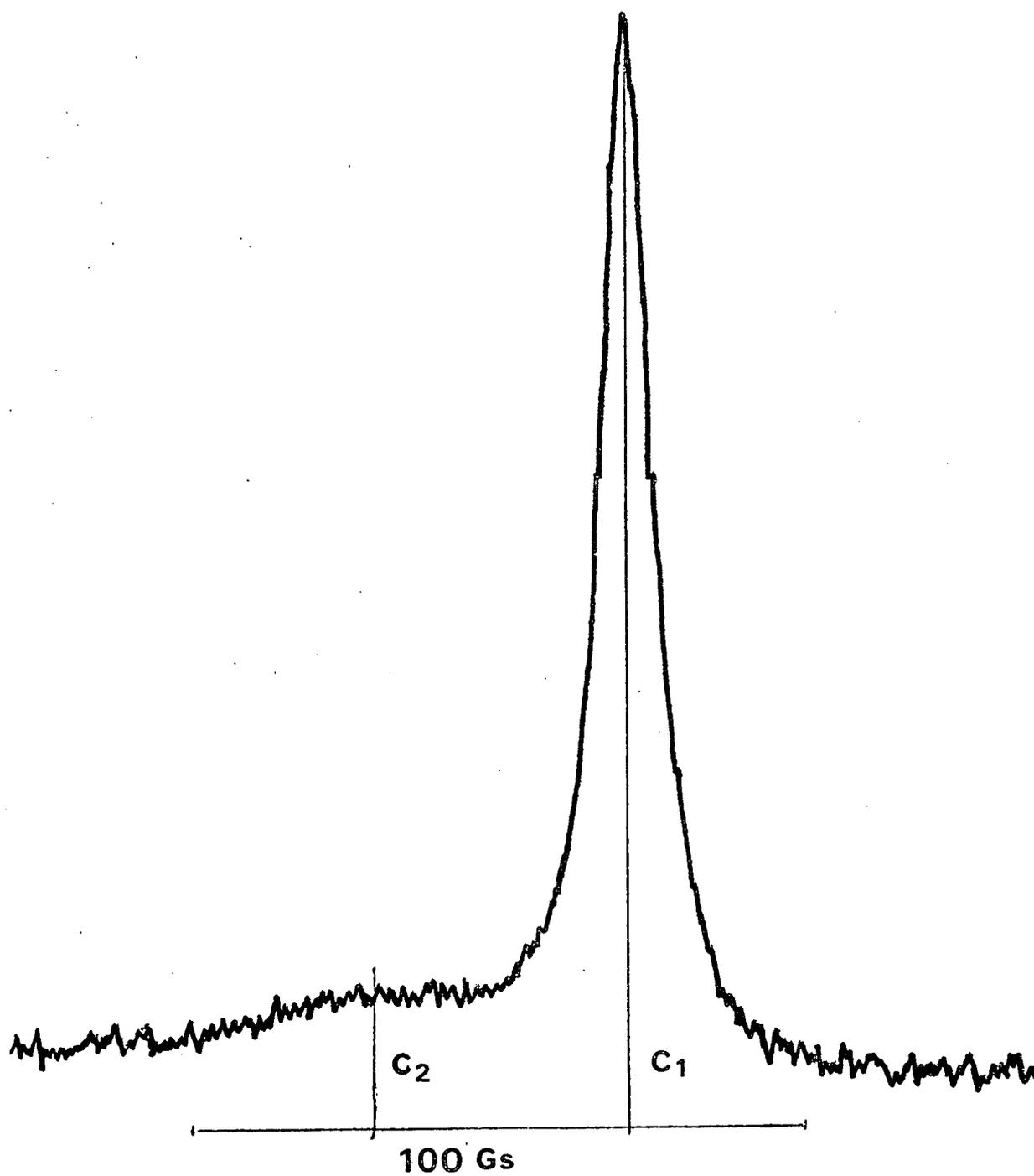


Figure V-5 : Croisements dans le niveau  $3s_2$  ( $J=1$ ) pompé optiquement par la raie  $7305 \text{ \AA}$  du laser He-Ne. Ce signal a été obtenu après trois heures d'intégration dans un analyseur multicanaux, en vue de la détection de  $C_2$ .

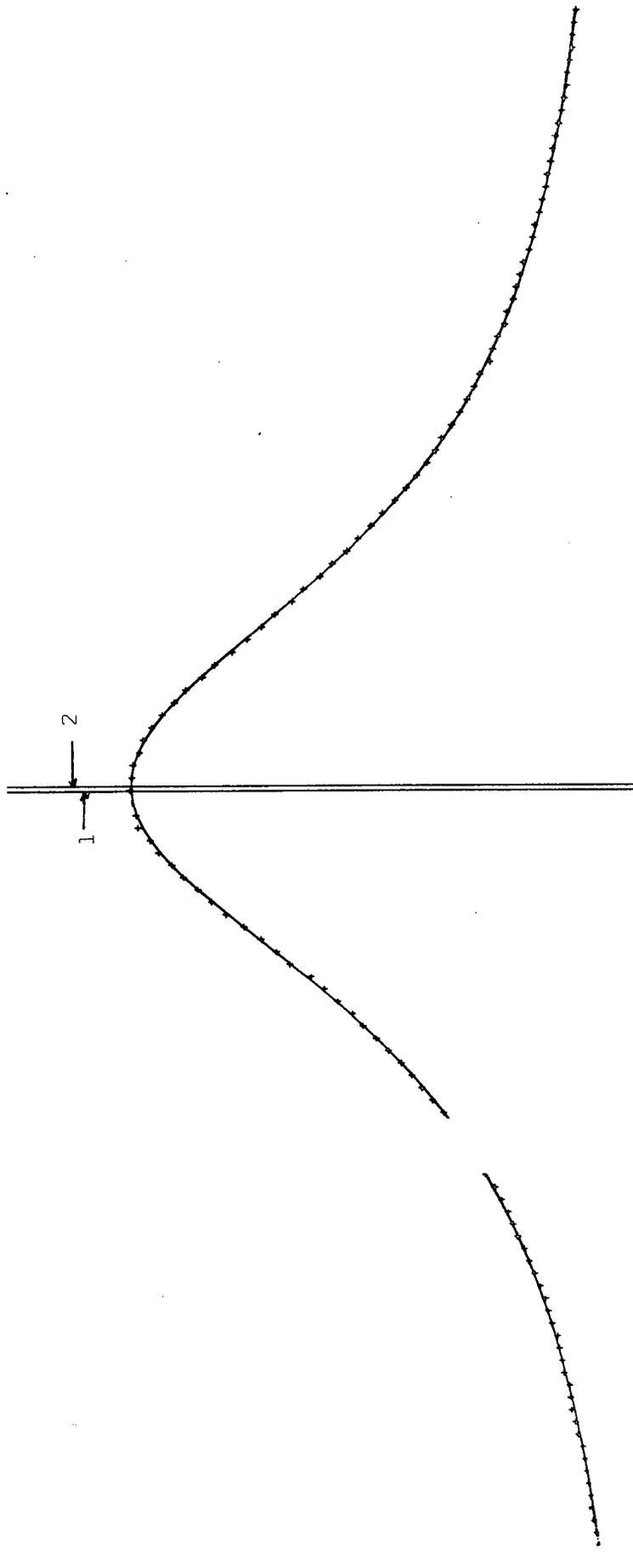
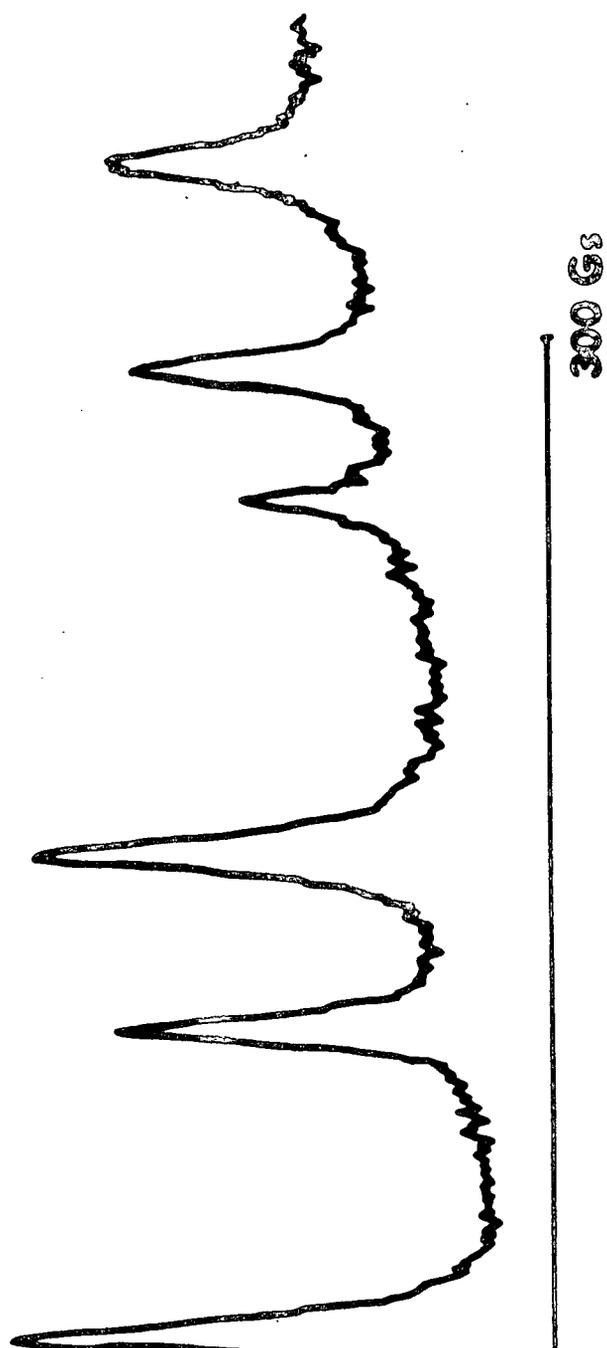


Figure V-6 : C<sub>1</sub> du niveau 2p<sub>7</sub> (J=1) pompé optiquement par la raie 6383 Å  
 (r à coléant). Ce signal a été enregistré sur bande perforée  
 e pouillé sur ordinateur. Les points sont expérimentaux. Les traits  
 i uent le centre obtenu lorsque la courbe ajustée est une lorentzienne  
 p (1), et lorsqu'elle contient un peu de dispersion (2). Les deux  
 c es correspondantes, toutes deux tracées par la machine sont dif-  
 f éremment discernables l'une de l'autre.



CROISEMENT EN CHAMP  
NUL

iments du niveau  $2p_6$  ( $J=2$ ), pompé optiquement par la raie  
iser à colorant). Pour la mesure précise de la position des  
s, on a en réalité effectué des balayages magnétiques de  
plitude autour de chacun d'eux.

Figure V-7 : Les cr  
6143 Å  
croise  
faible

Nous recenserons tout d'abord (§ a) les causes de déplacement et de déformation de ces courbes, et nous donnerons les ordres de grandeur des erreurs systématiques qui peuvent en résulter ; nous montrerons comment nous avons pu éliminer certaines d'entre elles par un choix convenable des conditions expérimentales.

Nous décrirons ensuite (§ b) la méthode de dépouillement des courbes de résonance qui nous a permis de tenir compte des asymétries.

Puis (§c) nous donnerons les valeurs des constantes A et B de structure hyperfine pour les niveaux que nous avons étudiés ; ces valeurs sont obtenues par un calcul supposant que la structure fine est grande devant la structure hyperfine ; nous montrerons que les corrections du second ordre sont négligeables dans notre cas.

Enfin (§ d) nous comparerons nos résultats aux valeurs calculées par S. LIBERMAN et nous tenterons d'améliorer l'accord entre valeurs expérimentales et calculs théoriques en tenant compte de la contribution de l'électron externe.

#### V-2a Etude des déplacements et déformations des courbes de croisement de niveaux

Nous étions en mesure de déterminer la position des courbes de croisements de niveaux avec une précision qui était de l'ordre de quelques centièmes de la largeur totale de la résonance. Il était donc nécessaire de rechercher les causes d'erreurs systématiques qui pouvaient intervenir à cette précision ; elles sont dues soit à des déplacements de la courbe de résonance par rapport au point de croisement de niveaux, soit à des asymétries qui faussent le résultat du dépouillement si l'on suppose la courbe symétrique.

##### a) Déplacements

Deux phénomènes d'origines très différentes peuvent déplacer la courbe de résonance de croisement : d'une part nous avons montré au § II 3b que la courbure des niveaux d'énergie au voisinage du croisement provoquait un déplacement du centre de la raie de résonance par rapport au point de

croisement. D'autre part, si la raie de pompage optique n'est pas centrée sur la raie d'absorption, il peut se produire un shift dû aux transitions virtuelles

-effet de la courbure des niveaux d'énergie :

Le déplacement qui résulte de la courbure des niveaux d'énergie est totalement indépendant des conditions expérimentales, mais il est facilement calculable à partir de la formule (II-62) lorsque l'on connaît la forme des niveaux d'énergie. A partir des diagrammes hyperfins reproduits sur les figures (II-1) et (II-2), nous pouvons évaluer graphiquement la courbure des niveaux au voisinage des points de croisement. Considérons le croisement  $C_1$  d'un niveau de  $J=2$ ; en ce point de croisement, l'un des sous-niveaux ( $1/2$ ,  $-1/2$ ) présente une courbure plus forte que celles que l'on peut observer au voisinage des autres croisements. Calculons le déplacement dû à la courbure dans ce cas; utilisant la définition (II-61), on a  $C/\Delta H = -2,4 \cdot 10^{-3} \text{ GS}^{-1}$ . Avec  $\Delta H = 4 \text{ Gs}$  (demi-largeur de  $C_1$  pour une pression de 0,5 torr de Néon, pour le niveau  $2p_4$ ), on obtient  $C \approx 10^{-2}$ ; or  $C$  est le rapport du déplacement  $\delta$  de la courbe de résonance à la largeur  $\Delta H$ . Notre précision expérimentale étant de l'ordre de quelques centièmes de la largeur,  $\delta$  est négligeable.

Dans tous les cas que nous avons étudié, nous pouvons donc négliger le déplacement dû à la courbure des niveaux.

-Shifts dûs aux transitions virtuelles.

Il est bien connu [36] que lorsque la raie de pompage n'est pas centrée sur la raie d'absorption, il risque de se produire un shift des sous-niveaux par transitions virtuelles. Dans notre cas, la raie de pompage doit donc être centrée au mieux sur les composantes hyperfines connectées aux sous-niveaux dont on étudie le croisement.

Cette condition est relativement facile à remplir lorsque l'excitation est produite par le laser à colorant; la largeur de spectre qu'il émet est toujours nettement supérieure à la fois à l'étalement en fréquence des sous-niveaux hyperfins d'un même niveau de structure fine  $\alpha J$  dans les champs magnétiques que nous utilisons et à la largeur Doppler, qui est ici du même ordre que la structure hyperfine. Nous choisissons la fréquence centrale du laser de manière à maximiser l'intensité de la fluorescence observée

en raie large sur une transition partant du niveau  $\alpha$  J. Dans ces conditions, les shifts dus à des transitions virtuelles sont à priori faibles devant les élargissements des courbes dus aux transitions réelles. Or les élargissements n'excédaient pas quelques % de la largeur de la courbe. Nous avons pu vérifier que la position des croisements de niveaux ainsi mesurée ne présentait aucune variation corrélée avec l'intensité du laser.

Il est beaucoup plus difficile d'éviter ces déplacements dans les expériences où la source lumineuse est le laser à Hélium-Néon : en effet la largeur du spectre d'émission sur les différentes raies rouges est de l'ordre de la largeur Doppler, et également de l'ordre de la structure hyperfine de ces raies dans le  $^{21}\text{Ne}$ . Cependant l'étude des croisements de niveaux du niveau  $3S_2$  excité par la raie  $7305 \text{ \AA}$  ( $2p_1 - 3s_2$ ) a été favorisée par l'existence d'une coïncidence isotopique : la raie à  $7305 \text{ \AA}$  du  $^{22}\text{Ne}$  est pratiquement centrée sur les composantes hyperfines reliées aux sous-niveaux dont nous étudions les croisements ; les fréquences de ces composantes sont très voisines les unes des autres car le niveau inférieur de la transition a un moment cinétique électronique J nul. Nous avons donc rempli le tube laser d'un mélange d'Hélium et de  $^{22}\text{Ne}$  au lieu de Néon naturel. Ici encore la position des croisements était, à la précision de nos mesures, indépendante de l'intensité du laser.

### $\beta$ ) Asymétries

A la forme lorentzienne d'absorption des résonances de croisement que permet de prévoir la formule (II-19) pour notre dispositif expérimental, se superpose dans certaines conditions une courbe de dispersion, souvent indécélable à l'oeil, mais d'effet non négligeable sur le résultat du dépouillement. Nous avons vu au § II-3 que la courbure des niveaux d'énergie et la variation des fonctions d'onde avec le champ magnétique étaient susceptibles d'être la cause d'une telle asymétrie. Par ailleurs la forme des courbes de résonance est extrêmement sensible à une légère déviation par rapport à la géométrie rectangulaire des directions de détection que nous croyions respecter.

-Effets liés à la structure de l'atome.

Si les déplacements causés par la courbure des niveaux d'énergie sont négligeables dans notre cas, il n'en est pas de même de l'amplitude de la dispersion due à cette courbure et à la variation des fonctions d'onde avec le champ magnétique dans la région du croisement étudié. Un calcul d'ordre de grandeur effectué dans quelques cas particuliers permettait de prévoir une amplitude relative de dispersion de quelques % ; ceci a été confirmé par le dépouillement sur machine des courbes, que nous décrivons au paragraphe suivant.

-Influence des directions de détection.

Lorsque la détection ne se fait plus rigoureusement parallèlement ou perpendiculairement à la polarisation excitatrice  $\vec{e}$ , la formule (II-19) montre que l'amplitude relative de la courbe de dispersion qui apparaît alors est proportionnelle à  $\sin 2\phi$  ( $\sim 2\phi$ ), où  $\phi$  est l'angle que fait la direction de détection avec  $\vec{e}$  (ou avec la perpendiculaire à  $\vec{e}$ ). Une erreur d'angle de  $1^\circ$  conduit ainsi à une courbe de dispersion dont l'amplitude est 4% de celle de l'absorption dans la direction d'observation considérée, ordre de grandeur qui n'est plus tout à fait négligeable.

Notre dispositif expérimental nous permettrait, quoique peu commodément, d'obtenir un réglage avec cette précision en minimisant l'asymétrie sur l'effet Hanle. Mais, principalement lorsque la source lumineuse est le laser à colorant, les angles des directions de détection avec la polarisation du laser ne se maintiennent pas à la valeur choisie. Cela provient des dilatations thermiques des diverses pièces du montage et des réajustements qui s'imposent si l'on veut maintenir la puissance du laser à un niveau constant au cours de la journée. Par suite le faisceau laser, quoique de diamètre peu différent de celui de la cellule, ne passe pas toujours strictement au même endroit dans cette cellule. Par ailleurs, la polarisation du laser à colorant est due au filtre biréfringent, incliné à l'angle de Brewster ; il est vraisemblable qu'il se produit de petites variations de l'angle d'incidence du faisceau laser sur le filtre et de l'angle du plan du filtre lui-même par rapport aux directions de détection choisies.

D'autre part, lorsque la population du niveau métastable ou "pseudo-métastable"<sup>(note\*)</sup> constituant le niveau inférieur de la transition était suffisante, nous avons observé une rotation Faraday de la polarisation du laser de plusieurs degrés, après passage du faisceau à travers quelques centimètres de gaz. On peut éliminer complètement cet effet en réduisant la longueur de la cellule et en opérant à pression et intensité de décharge faibles. C'est ce qui nous a amenés à utiliser une décharge à 1 MHz pour l'étude des croisements de niveaux.

#### V-2b Dépouillement des enregistrements expérimentaux

Nous venons de voir qu'il n'était pas toujours possible d'obtenir des courbes de croisement qui soient purement d'absorption. Lorsque l'amplitude de la forme de dispersion additionnelle est faible, il est difficile, lors d'un dépouillement manuel, de discerner la légère asymétrie qui en résulte de celle que provoque un fond continu incliné (à cause de l'influence du balayage magnétique sur l'intensité de la décharge elle-même, le fond continu sur lequel apparait le signal a rarement une pente nulle). Si, négligeant la dispersion, on cherche le centre de la courbe expérimentale en supposant qu'il s'agit de la somme d'une courbe d'absorption et d'une droite, on commet une erreur sur la position du centre qui est, en pourcentage de la largeur totale, de l'ordre de l'amplitude relative de la courbe de dispersion.

---

\* ) Les niveaux non métastables de la configuration  $2p^5 3s$  sont très peuplés par suite de la réabsorption totale des raies de résonance; ils sont pour cette raison souvent appelés "pseudo-métastables".

---

Pour déterminer la position des croisements avec précision, nous avons été amenés à enregistrer les courbes de croisement sur bande perforée, par l'intermédiaire d'un système de transformation analogique-digital. Un traitement sur ordinateur (PDP 15) nous permettait ensuite d'ajuster sur les courbes expérimentales la somme d'une forme d'absorption, d'une forme de dispersion et d'une droite. La largeur et le centre communs de l'absorption et de la dispersion, leurs hauteurs respectives, la pente et l'ordonnée à l'origine de la droite étaient considérés comme des paramètres et choisis de manière à minimiser l'écart entre courbes calculée et expérimentale.

Nous avons constaté que l'amplitude de la courbe de dispersion ne se fixait à une valeur significative sur un ensemble de courbes prises dans les mêmes conditions expérimentales que lorsque le rapport signal/bruit était assez bon ( $\sim 20$ ). Dans les autres cas, nous avons tenu compte d'une asymétrie possible pour annoncer la précision des résultats.

Nous avons également évalué l'effet de la variation de la décharge avec le balayage magnétique et l'effet de la présence d'un autre croisement voisin. Le résultat sur la position du croisement est toujours négligeable. Dans le cas où nous utilisions pour le pompage optique une transition partant du métastable  $1s_5$  ( $J=2$ ), nous avons vérifié qu'il n'y avait pas de coïncidence entre les croisements dans le niveau métastable et dans le niveau étudié.

#### V-2c Position des croisements et calculs des constantes de structure hyperfine

Nous avons mesuré la position de chaque croisement de niveaux dans des conditions expérimentales variées, de pression, niveau de décharge et intensité du laser. Les tableaux (V-1) et (V-2) donnent des exemples de telles séries de mesures (chaque résultat expérimental correspond à la moyenne des résultats sur 4 ou 6 courbes). On n'observe aucun déplacement significatif des croisements avec les paramètres expérimentaux.

A partir de ces positions des croisements, nous avons calculé, pour chaque niveau  $\alpha J$  considéré, les valeurs des constantes de structure

Pression de néon (torr)	Pression d'Hélium (torr)	Décharge (unités arbitraires)	Intensité laser		$C_1$ (Gs)
			(mW)		
0.003	3	14	80		627.42
0.01	1	16	50		627.33
0.03	3	14	50		627.47
0.03	3	20	50		627.33
0.03	0.6	15	50		627.29
0.1	1.9	15	50		627.29
0.1	1.9	15	420		627.27
1.4	0	12	80		627.39

Pression de néon	Pression d'Hélium	Décharge	Intensité laser		$C_2$
0.1	1.9	14	70		906
0.1	1.9	16	70		915
0.3	1.7	16	70		899
0.03	3	15	70		904

$C_1$ (Gs)	$C_2$ (Gs)	$A/g_J$ (MHz)	$B/g_J$ (MHz)
exp. $627.34 \pm 0.20$	exp. $906 \pm 14$	$-439.61 \pm 0.40$	$+42.10 \pm 1.20$
calc 627.34	calc 906		

Tableau (V-1) Croisements du niveau  $2p_5$  (J-1) .

[Comme  $C_2$  est bien plus difficile à observer que  $C_1$ , il a été étudié dans des conditions expérimentales moins variées. Les valeurs de  $A/g_J$  et  $B/g_J$  ont été calculées à partir des valeurs moyennes des positions de  $C_1$  et  $C_2$ ].

pres. Ne (torr)	pres. He (torr)	décharge (n.arbitraires)	tensité aser		(Gs)						barre d'erreur sur C <sub>2</sub>	A/g <sub>J</sub> (MHz)	B/g <sub>J</sub> (MHz)
					C <sub>1</sub>	C <sub>2</sub>	C <sub>3</sub>	C <sub>4</sub>	C <sub>5</sub>	C <sub>6</sub>			
1.5	0	14	25	exp	93.52	185.13	237.27	344.84	385.43	448.53	±0.20	-196.31	-79.25
				calc	93.62	184.99	237.30	344.61	385.62	448.49			
1.5	0	14	4	exp	93.43	185.05	237.29	344.50	385.65	448.20	±0.40	-196.27	-79.33
				calc	93.58	184.93	237.23	344.55	385.55	448.43			
0.17	0	15	25	exp	93.59	185.12	237.47		385.55	448.12	±0.40	-196.27	-78.91
				calc	93.71	185.05	237.37		385.50	448.30			
0.1	1.9	21	30	exp	93.37	185.11	237.26	344.50	385.65	448.25	±0.50	-196.29	-79.36
				calc	93.57	184.91	237.21	344.56	385.58	448.46			
0.1	1.9	13	25	exp	93.58	185.15	237.43		385.87	448.11	±0.50	-196.35	-79.09
				calc	93.70	185.07	237.40		385.64	448.48			

Tableau (V-2): Croisements du niveau 2p<sub>g</sub> (J=2)

hyperfine dipolaire magnétique  $A(\alpha J)$  et quadrupolaire électrique  $B(\alpha J)$ . En fait la position des croisements n'est sensible qu'au rapport de ces constantes au facteur de Landé du niveau :  $A(\alpha J)/g_J$  et  $B(\alpha J)/g_J$ . Nous avons utilisé un programme d'optimisation recherchant le couple de valeurs  $A(\alpha, J)/g_J$ ,  $B(\alpha, J)/g_J$  qui rende minimum l'écart quadratique moyen entre les positions expérimentales des croisements et les positions déterminées à partir de  $A(\alpha J)/g_J$  et  $B(\alpha J)/g_J$ . Ce calcul a été fait dans l'hypothèse où le niveau  $\alpha J$  est bien isolé et où l'on peut se limiter à la diagonalisation de la somme de l'hamiltonien hyperfin et de l'hamiltonien Zeeman à l'intérieur du niveau  $\alpha J$ .

Les tableaux mentionnés ci-dessus donnent également  $A(\alpha J)/g_J$  et  $B(\alpha J)/g_J$  et les positions de ces croisements calculées avec ces valeurs. Toutes les positions calculées sont en accord avec les résultats expérimentaux, à la marge d'incertitude près. Ce fait n'est évidemment pas surprenant quand il n'y a que deux croisements (on ajuste deux valeurs avec deux paramètres), mais lorsque les valeurs de A et B sont déterminées à partir de six croisements cela montre qu'il n'y a pas d'erreur systématique importante sur la position de chaque croisement (sauf s'il s'agissait d'une erreur sur chaque croisement proportionnelle au champ magnétique dans lequel il se produit, comme par exemple une erreur d'étalonnage du champ).

Le tableau (V-3) donne les valeurs de  $A(\alpha J)/g_J$ ,  $B(\alpha J)/g_J$ ,  $A(\alpha J)$  et  $B(\alpha J)$  pour les niveaux étudiés (les facteurs de Landé ont été mesurés par ailleurs par la méthode de double résonance (cf § V-3)).

Remarquons que comme nous n'avons étudié que les croisements de  $\Delta m = 2$ , nous n'avons accès qu'au signe relatif de A et B. Le signe de A peut être déduit, grâce à des considérations théoriques, de mesures de structures hyperfines d'autres niveaux du  $^{21}\text{Ne}$  (cf Chap. VI).

Les résultats que nous venons de donner ont été obtenus en considérant que la structure fine était très grande devant la structure hyperfine. En fait pour les niveaux 2p le rapport des énergies qui interviennent est de l'ordre de grandeur de la précision de nos mesures ; à partir des valeurs de  $A(\alpha J)$  et  $B(\alpha J)$  données ci-dessus nous avons donc calculé les positions

niveau Paschen Racah	A/g <sub>J</sub> (MHz)	B/g <sub>J</sub> (MHz)	g <sub>J</sub> (cf § V-3)	A (MHz)	B (MHz)	A valeurs théoriques	B [19
2p <sub>2</sub> 3p' $\left[ \frac{1}{2} \right] 1$	+ 56.20±0.40	(voir note*)	1.3397 (6)	+75.3±0.6		+84.9	0.45
2p <sub>4</sub> 3p' $\left[ \frac{3}{2} \right] 2$	-238.42±0.35	+ 37.80±0.40	1.2983 (8)	-309.5±0.7	+49.1±0.6	-301.8	+48
2p <sub>5</sub> 3p' $\left[ \frac{3}{2} \right] 1$	-439.61±0.40	+ 42.10±1.20	0.9932 (4)	-436.6±0.6	+41.8±1.2	-433.2	+43.2
2p <sub>6</sub> 3p $\left[ \frac{3}{2} \right] 2$	-150.69±0.30	-55.86± 0.50	1.2321(10)	-185.7±0.5	-68.8±0.7	-183.3	-69.3
2p <sub>7</sub> 3p $\left[ \frac{3}{2} \right] 1$	-622.22±0.60	-83.8 ±4.3	0.6779 (8)	-421.8±0.9	-56.8±3.0	-412.5	-54.6
2p <sub>8</sub> 3p $\left[ \frac{5}{2} \right] 2$	-196.29±0.30	-79.19 ±0.60	1.1364 (8)	-223.1±.5	-90.0±0.8	-214.2	-90.3
3s <sub>2</sub> 5s' $\left[ \frac{1}{2} \right] 1$	-563.25±0.30	-10.4 ± 1.9	1.2925 (10)	-728.0±1.0	-13.4±2.5	-720	-13.8

Tableau(V-3) Structures hyperfines

(Note\*) nous n'avons pas pu détecter le second croisement , C<sub>2</sub>. Mais le calcul montre que si B est petit, la position de C<sub>1</sub> dépend principalement de A. Réciproquement si B est petit, A est donné par la position de C<sub>1</sub>. Nous avons supposé ici (conformément à la prévision théorique) que B < A/20 .

des croisements lorsque l'on tient compte au second ordre de perturbation de l'effet des éléments de matrice non diagonaux  $\langle \alpha J || \mathcal{H}_{\text{hyp}} || \alpha' J' \rangle$  de l'interaction hyperfine  $\mathcal{H}_{\text{hyp}}$ . Pour cela nous avons pris les hypothèses simplificatrices des § I-3b et I-2c (on néglige l'effet de l'électron externe et l'hamiltonien quadrupolaire électrique : les éléments non diagonaux de  $\mathcal{H}_{\text{hyp}}$  ne dépendent que d'une seule intégrale radiale,  $a_{2p}$  (défini en I-16a)). Nous avons adopté pour  $a_{2p}$  la valeur de 516 MHz qui est celle que donne S. LIBERMAN [19]. La méthode exposée au § I-3b nous a alors permis de calculer les corrections du second ordre aux positions des croisements de niveaux, en tenant compte de l'influence de tous les niveaux de la configuration  $2p^5 3p$ . Les corrections obtenues sont toujours inférieures à 0.05 Gs, donc négligeables à notre précision de mesure. Réciproquement, il n'y a donc pas lieu de corriger les valeurs de  $A(\alpha J)$  et  $B(\alpha J)$  déduites de la position des croisements par le calcul au premier ordre.

V-2d Comparaison avec les résultats de S. LIBERMAN ; calcul de l'effet de l'électron externe.

Le tableau (V-3) donne dans les dernières colonnes les résultats des calculs de S. LIBERMAN pour les niveaux dont nous avons mesuré les constantes de structure hyperfine. L'écart entre ces valeurs théoriques et nos déterminations expérimentales est en moyenne de 5%.

Rappelons que les calculs théoriques de S. LIBERMAN ne sont pas des calculs "ab initio"; les intégrales radiales sont considérées comme des paramètres et choisis de manière à rendre compte de résultats expérimentaux (cf § I-1 et I-2b). Il serait intéressant, maintenant que nous disposons d'un plus grand nombre de résultats expérimentaux, de reprendre un calcul d'optimisation sur les paramètres radiaux.

Dans un premier temps nous conserverons les fonctions d'onde obtenues par S. LIBERMAN et nous essaierons d'améliorer les valeurs des paramètres radiaux spécifiques de l'interaction hyperfine. En effet

en ce qui concerne les fonctions d'onde des niveaux  $2p$ , l'accord relativement bon entre les facteurs de Landé qu'on en déduit et nos valeurs expérimentales (cf § V-3) laisse supposer qu'elles représentent bien le couplage réel.

Nous conserverons également les paramètres radiaux concernant l'interaction hyperfine entre le noyau et les électrons du coeur, utilisés par S. LIBERMAN ; en effet le traitement relativiste de l'interaction hyperfine négligeant la contribution de l'électron externe conduit à des valeurs qui sont en très bon accord avec l'expérience dans certains niveaux dont les fonctions d'onde sont peu susceptibles d'être erronées et qui sont assez excités pour que la contribution de l'électron externe soit à priori très faible .

niveau	A	A exp. (MHz)	A calc. (MHz)
4d' [5/2] 3		-235,9(chap VI)	- 234
5s [3/2] 1(3s <sub>2</sub> )		-728,0(ce chap.)	- 720

Nous avons donc tenté ici pour la configuration  $2p^5 3p$  d'introduire l'effet de l'électron externe en ajustant sur les six mesures dont nous disposons le seul paramètre  $a_{3p}$  . Il est clair que ce calcul ne constitue qu'une étape préliminaire à un traitement plus complet.

Nous avons calculé les éléments de matrice réduits diagonaux de l'opérateur  $\vec{N}_{ext}$  (cf eq. I-1) correspondant à l'interaction hyperfine entre l'électron externe et le noyau dans chacun des états  $2p^5 3p$  à l'aide des fonctions d'onde de S. LIBERMAN [19] . Puis nous avons déterminé la valeur de  $a_{3p}$  permettant de minimiser l'écart quadratique moyen entre nos valeurs expérimentales et les valeurs définies par

$$A_{th}(\alpha J) = A_{Liberman}(\alpha J) + a_{3p} \frac{\langle \alpha J || \vec{N}_{ext} || \alpha J \rangle}{\sqrt{J(J+1)(2J+1)}}$$

Nous obtenons ainsi la valeur :

$$a_{3p} = - 18 \text{ MHz}$$

L'écart quadratique moyen entre valeurs calculées et expérimentales est alors réduit par un facteur 3.

Nous avons considéré l'écart quadratique moyen relatif défini de la manière suivante :

$$\Delta x = \left[ \frac{\sum_{i=1, n} \left[ \frac{x_{th}^i - x_{exp}^i}{x_{exp}^i} \right]^2}{n - p} \right]^{1/2}$$

où n est le nombre de niveaux considérés et p le nombre de paramètres ajustés ; ici on a n=6 , p=0 dans le cas où on néglige l'effet de l'électron externe (en effet, les intégrales radiales intervenant dans l'interaction hyperfine entre le coeur et le noyau , ont été déterminées à partir de mesures sur d'autres niveaux (cf ref [19] ) ou calculées a priori) . Dans le cas où on introduit l'effet de l'électron externe, on a p=1.

Les nouvelles valeurs théoriques sont données dans le tableau suivant, où elles sont comparées aux valeurs de S. LIBERMAN et aux valeurs expérimentales.

niveau	$A_{exp}$	$A_{th}$ (ref [19] )	$A_{th}$ (ce calcul)
2p <sub>2</sub> 3p' (1/2)1	+ 75,3	+ 84,9	+76,9
2p <sub>4</sub> 3p' (3/2)2	-309,5	-301,8	-309,0
2p <sub>5</sub> 3p' (3/2)1	-436,6	-433,2	-449,1
2p <sub>6</sub> 3p (3/2)2	-185,7	-183,3	-188,2
2p <sub>7</sub> 3p (3/2)1	-421,8	-412,5	-419,3
2p <sub>8</sub> 3p (5/2)2	-223,1	-214,2	-226,2

On peut remarquer que pour le niveau 2p<sub>5</sub> (3p' (3/2)1) , l'accord est moins bon que pour les autres niveaux (3% d'écart , au lieu de 1% , en moyenne pour les autres). Or on constate aussi pour ce niveau un assez net désaccord entre le facteur de Landé calculé et mesuré (8 10<sup>-3</sup> au lieu de 2 10<sup>-3</sup> pour ceux des autres niveaux). Il est donc probable que la fonction d'onde est en cause également dans l'explication du désaccord sur la constante de structure hyperfine A.

Grâce à la méthode de croisements de niveaux en pompage optique laser, nous avons donc pu obtenir des valeurs précises de constantes de structure hyperfines A et B qui n'avaient jamais été mesurées à notre connaissance. La comparaison entre nos résultats et ceux du traitement de S. LIBERMAN nous a montré que l'accord entre théorie et expérience pouvait être très satisfaisant, moyennant l'adjonction de l'effet de l'électron externe.

### V-3 Les expériences de résonance magnétique

Rappelons que, comme les expériences de croisements de niveaux ne donnent que les rapports  $A/g_J$  et  $B/g_J$  des constantes de structure hyperfine aux facteurs de Landé, nous avons dû, pour déterminer ces derniers faire appel à une autre méthode, la double résonance.

Les expériences de résonance magnétique sur des niveaux excités radiatifs dans une décharge doivent tenir compte d'un certain nombre d'exigences contradictoires :

- la durée de vie des niveaux que nous avons étudiés étant environ une dizaine de ns, il est nécessaire, si l'on veut observer un signal de résonance magnétique, d'appliquer sur la cellule un champ magnétique oscillant de l'ordre du Gauss, ou de plusieurs Gauss. Une telle onde RF positive perturbe considérablement la décharge ; de plus la décharge elle-même constitue un blindage pour le champ RF : pour une pression et un champ magnétique statique donnés, l'intensité du champ de radiofréquence auquel sont réellement soumis les atomes se sature assez vite.

- par ailleurs, si l'on veut mesurer les facteurs de Landé avec une précision intéressante ( $\sim 10^{-3}$ ) il faut opérer dans des champs magnétiques grands devant la largeur de la courbe de résonance ; or il semble expérimentalement que l'effet de blindage évoqué ci-dessus s'accroît lorsque le champ magnétique statique augmente.

Nous avons pu trouver un moyen terme entre ces conditions en travaillant dans des champs magnétiques compris entre 100 et 300 Gs c'est-à-dire pour des fréquences comprises entre 200 et 600 MHz et dans des pressions de Néon allant de 0,1 à 2 torr.

Vu les fréquences utilisées, nous ne pouvions observer dans la lumière de fluorescence que le signal de résonance non modulé apparaissant sur les grandeurs longitudinales.

La détection de la lumière de fluorescence émise perpendiculairement au champ magnétique, décrite au § 1, est sensible à l'alignement longitudinal.

On sait que la courbe de résonance magnétique obtenue dans ces conditions n'a une forme d'absorption de Lorentz que lorsque l'intensité de radiofréquence est très faible ; dans le cas général , la courbe de résonance a la forme de Majorana-Brossel , étudiée par de nombreux auteurs [ 1 ] [51] . Nous avons vu ( cf § III-2a) que cette forme de courbe se complique encore lorsque l'interaction avec le laser couple l'alignement aux autres observables tensorielles mais qu'elle reste symétrique et centrée sur la fréquence  $\omega_0 = g_J \mu_B H_0$  lorsque ce couplage n'est possible qu'à l'intérieur d'un même niveau.

Nous allons tout d'abord étudier les effets parasites et déplacements qui peuvent causer des erreurs systématiques dans la mesure des facteurs de Landé. Nous donnerons ensuite les résultats que nous avons obtenus et nous les comparerons aux mesures d'autres auteurs et aux valeurs calculées à partir des fonctions d'onde de S. LIBERMAN.

#### V-3a Etude des déplacements et asymétries de la raie de résonance magnétique

##### a) Effet des résonances de saturations

Lorsque nous avons commencé les expériences de double résonance sur le laser à colorant , de polarisation rectiligne "  $\sigma$  " , nous avons constaté que l'on observait en plus de la raie de résonance magnétique, les résonances de saturations entre modes différents du laser étudiées par M. DUMONT [ 42 ] .

On peut donner une interprétation simplifiée de ces résonances de la manière suivante : dans le champ magnétique  $H$  , la condition pour qu'un atome de vitesse  $v$  interagisse avec la composante  $\sigma^+$  du mode  $\mu$  de fréquence  $\omega_\mu$  est  $\omega_\mu - kv = \omega + g_J \mu_B H$  (où  $\omega$  est la fréquence atomique de la transition). Ce même atome peut également interagir avec la composante  $\sigma^-$  d'un autre mode,  $\nu$  si de plus  $\omega_\nu - kv = - g_J \mu_B H$  . Si la condition  $\omega_\mu - \omega_\nu = 2g_J \mu_B H$  est remplie, il apparaît un effet de saturation sur les populations et une résonance des cohérences Zeeman analogue aux résonances en lumière modulée [58] . L'effet de saturation des populations est en général très large (largeur des cohérences optiques) et nos expériences n'y sont pas sensibles. Par contre, la résonance de cohérence a la largeur des cohérences Zeeman à l'intérieur du niveau considéré ; cette résonance de cohérence est modulée à la fréquence de battement entre modes, mais aux

ordres supérieurs de l'interaction avec le laser, elle apparaît sur la partie non modulée des grandeurs longitudinales. Ces résonances de saturation se produisent chaque fois que  $H = n\Delta\omega / 2g_j\mu_B$  où  $\Delta\omega$  est l'intervalle entre modes du laser et  $n$  un entier. De même que M. DUMONT [43], nous aurions pu utiliser ces résonances pour mesurer les facteurs de Landé. En fait un calcul plus complet [42] montre qu'elles ne sont pas simples à interpréter : leur position dépend des facteurs de Landé des deux niveaux de la transition laser.

Nous avons donc plutôt cherché à les éliminer, car si l'une de ces résonances se superpose à la courbe de résonance magnétique, on peut faire une erreur importante dans le pointage du centre de cette dernière. Nous avons donc interposé une lame d'onde sur le trajet du faisceau laser, de manière à produire un pompage  $\sigma^+$  ou  $\sigma^-$ , Mais à cause de la fenêtre inclinée à l'angle de Brewster de la cellule, la polarisation de la lumière laser dans la cellule était en fait elliptique. Changer la cellule posait des problèmes techniques importants. Nous avons donc choisi de produire à l'extérieur de la cellule une polarisation elliptique en ajoutant sur le trajet du faisceau laser une lame demi-onde ou une autre fenêtre de Brewster inclinée pour une polarisation perpendiculaire à celle du laser. Nous ajustons le réglage de ces éléments pour une polarisation exactement circulaire à l'intérieur de la cellule en minimisant l'amplitude de l'effet Hanle observé sur la cellule. L'amplitude des résonances de saturation parasites était alors au moins inférieure au centième de celle de la résonance magnétique. (note ★)

---

(note ★) Remarquons que pour observer ces résonances de saturation entre modes, il faut que les différents modes du laser présentent entre eux une certaine relation de phase. Il est donc probable que le laser à colorant, par suite de la configuration très dissymétrique de sa cavité, fonctionne sur un régime plus proche du régime "mode locked" [15] que le laser à Hélium-Néon, avec lequel nous n'avons pas observé ces résonances de saturation dans des conditions par ailleurs analogue.

---

### β) Déplacement Bloch Siegert et asymétrie des courbes

Pour chaque niveau étudié et dans chaque champ magnétique où nous avons effectué des mesures, nous avons vérifié que la position de la courbe de résonance était indépendante de la puissance de radiofréquence : l'effet Bloch Siegert était toujours négligeable dans nos expériences.

D'autre part, nous avons vu au § III-1 que lorsque l'on détectait la résonance magnétique sur l'alignement, en présence d'un champ de radiofréquence linéaire, il se superposait à la courbe d'absorption une courbe de dispersion de faible amplitude, proportionnelle à  $\frac{\omega_2}{\omega}$  alors que l'amplitude de la courbe d'absorption est proportionnelle à  $\frac{\omega_2}{\Gamma}$ . Nous nous sommes toujours placés dans des champs magnétiques suffisamment élevés pour que l'amplitude de cette courbe de dispersion soit négligeable.

### γ) Déplacements dus aux transitions virtuelles

#### ■ Cas du pompage optique utilisant le laser à Hélium-Néon :

Nous avons observé, lors de l'étude du niveau  $3s_2$  à l'aide de la raie à  $7305 \text{ \AA}$  ( $2p_1 (J=0) \leftrightarrow 3s_2 (J=1)$ ) du laser à hélium néon, un déplacement de la raie de résonance magnétique dépendant de l'intensité du laser (fig V-8). Ce déplacement radiatif ne peut pas être imputé à un effet de la circulation de cohérence par transitions réelles puisque le niveau inférieur à un moment cinétique nul. On peut par contre l'expliquer par un effet des transitions virtuelles : dans les champs magnétiques que nous utilisons (140 à 340 Gs), l'écart entre les composantes  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  de la raie d'absorption n'est pas négligeable devant la largeur de la raie laser (nous ne pouvons pas changer la polarisation de l'onde laser car la cellule est ici à l'intérieur de la cavité laser). Le sous niveau Zeeman  $m = +1$  est excité par une raie dont le centre est décalé du côté des fréquences faibles, le sous niveau Zeeman  $m = -1$  par une raie décalée du côté des fréquences fortes. Ils se déplacent donc en sens opposés, et en conséquence, la position de la raie de résonance magnétique est changée.

On vérifie sur la figure (V-8) que les valeurs des facteurs de Landé correspondant aux positions des raies de résonance magnétique extrapolées à intensité laser nulle sont concordantes pour les différentes valeurs de la fréquence du champ magnétique oscillant.

● pompage optique utilisant le laser à colorant.

Dans le cas des niveaux de  $J=1$  excités par une raie laser  $J=1 \leftrightarrow J=0$  ou  $J=1 \leftrightarrow J=1$  nous n'avons jamais observé de déplacement dépendant de l'intensité du laser. Nous en avons observé dans certaines conditions de champ magnétique et de pression sur les niveaux de  $J=2$  que nous avons étudiés à l'aide d'une raie laser  $J=2 \leftrightarrow J=2$  ( $2p_6$  et  $2p_8$ ). Cependant ces effets étaient inchangés lorsque l'on déplaçait légèrement la fréquence du laser par rapport à la raie de résonance atomique et lorsque l'on tournait la lame quart-d'onde de  $\pi/2$  pour changer la polarisation  $\sigma^+$  en  $\sigma^-$ . Nous les avons donc interprétés comme provenant de circulation de cohérence par transitions réelles.

δ) Déplacements liés aux transitions réelles

Nous n'avons effectué le calcul complet de la forme de raie de résonance magnétique en présence d'une forte intensité laser que dans le cas des transitions 0.1 et 1.1 et dans l'hypothèse où l'intensité de l'onde radiofréquence est très faible. Ce calcul nous a permis de mettre en évidence d'une part l'apparition d'un creux dans la forme de Lorentz initiale, dû au couplage pour le laser de grandeurs tensorielles de temps de relaxation différent à l'intérieur d'un même niveau (III-2a), d'autre part le shift et l'asymétrie dûs à la circulation de cohérence Zeeman entre les deux niveaux de la transition laser (§ III-2b). Dans le cas des transitions  $J=2 \leftrightarrow J=2$  excitées en lumière circulaire, ces différents phénomènes se compliquent par suite du nombre de grandeurs tensorielles qui interviennent dans chaque niveau. Cependant on conçoit que les déplacements observés lors de l'étude des niveaux  $2p_6$  et  $2p_8$  avec les raies  $1s_5 (J=2) \leftrightarrow 2p_6 (J=2)$  et  $1s_5 (J=2) \leftrightarrow 2p_8 (J=2)$  apparaissent seulement dans les champs magnétiques assez faibles où la circulation de cohérence est possible et dépendent de la largeur des résonances,

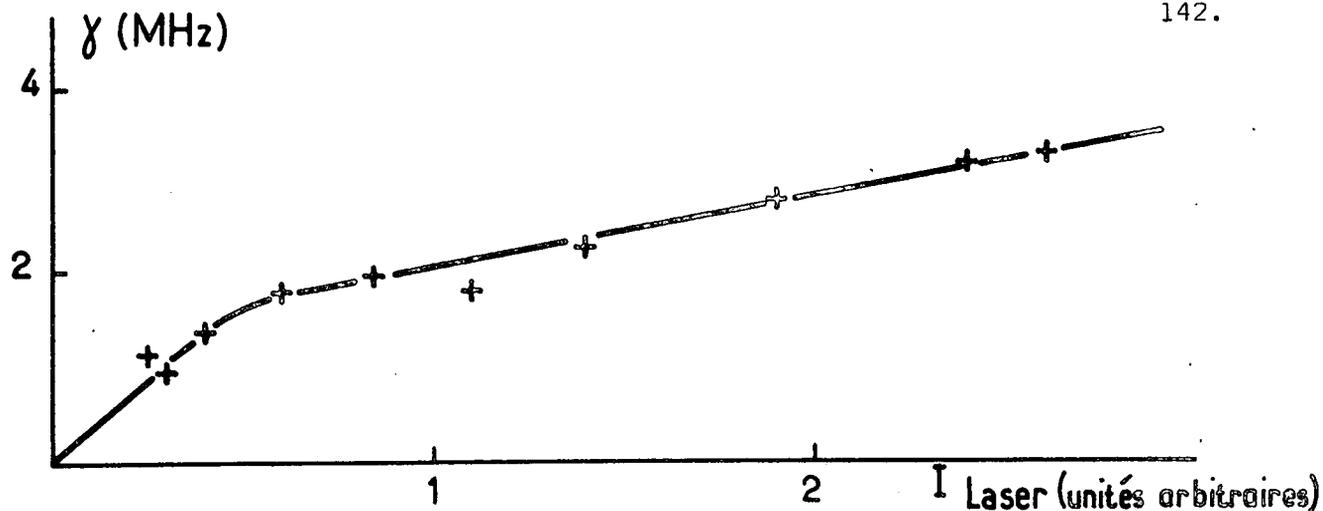


Figure V-8 (a) Variation du taux de pompage  $\gamma$  sur la transition  $7305 \text{ \AA}$  ( $2p_1 \rightarrow 3s_2$ ) du laser à He-Ne avec l'intensité laser. Comme l'avait constaté auparavant M. DUCLOY, cette variation n'est pas linéaire. A l'aide du traitement décrit au § II-2 de la ref [16], nous avons déterminé  $\gamma$  pour chaque valeur de  $I_{\text{laser}}$  en mesurant la largeur de l'effet Hanle du niveau  $3s_2$ .

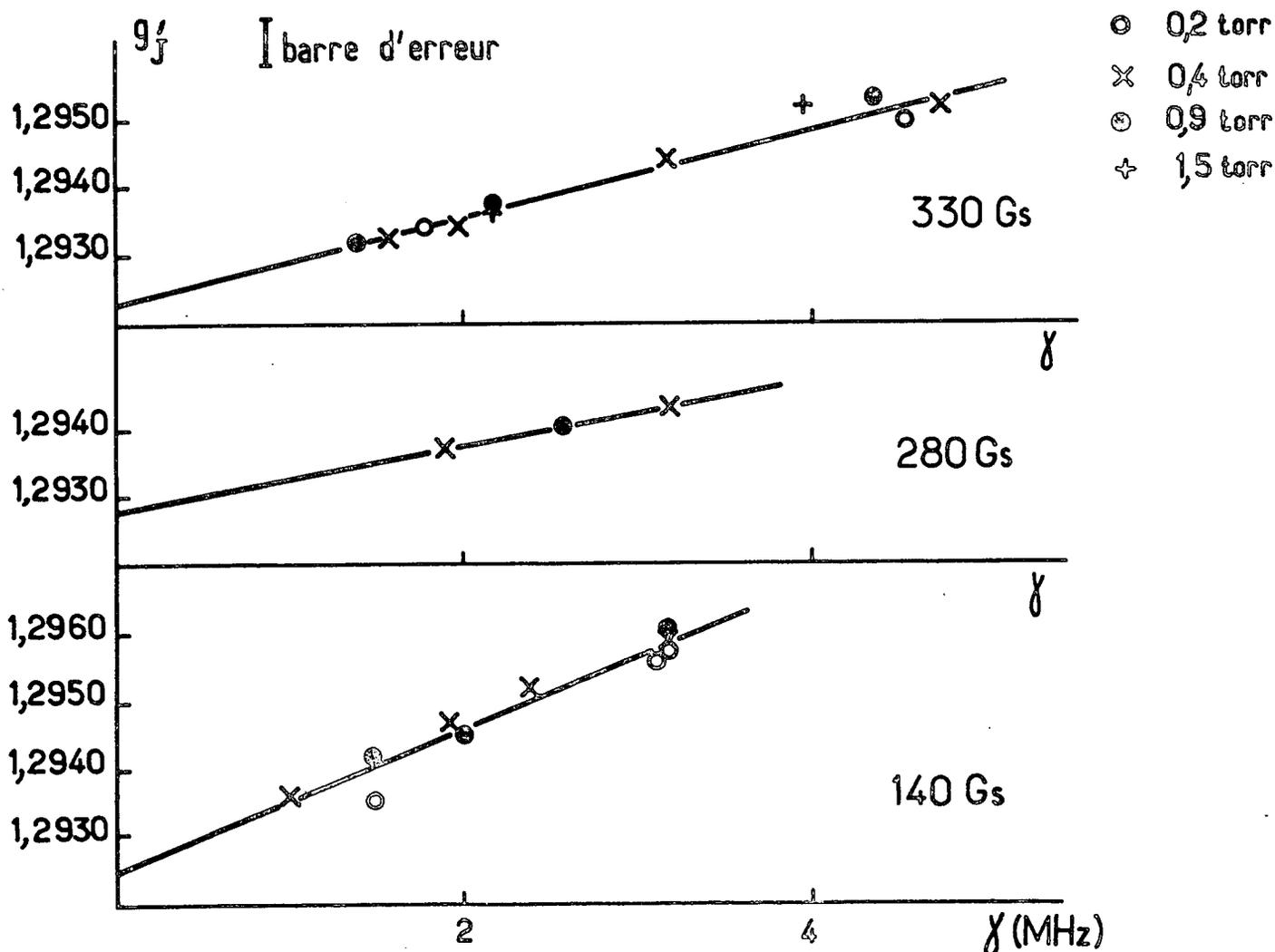


Figure V-8 (b) Variation de  $g'_J = \nu / \mu_B H_0$  ( $\nu$  fréquence du champ RF,  $H_0$  champ magnétique statique) avec  $\gamma$ , pour différentes valeurs de  $H_0$  et différentes pressions. Les valeurs extrapolées à  $\gamma$  nul sont concordantes. On obtient  $g_J = 1,2926$  (10).

donc de la pression de gaz dans la cellule. Nous avons vérifié que les positions des raies de résonance extrapolées à intensité de laser nulles correspondent à des valeurs de facteurs de Landé concordantes avec celles obtenues en champ magnétique plus fort.

### V-3b Résultats

Les valeurs des facteurs de Landé que nous avons obtenues sont données dans le tableau suivant. Nous donnons également les résultats d'autres auteurs et les valeurs déduites des fonctions d'onde de S. LIBERMAN.

Rappelons que les fonctions d'onde ont été calculées à partir des positions des niveaux d'énergie donc de manière totalement indépendante des facteurs de Landé, qui en constituent un test intéressant. Dans notre cas, l'accord est satisfaisant.

niveau Paschen Racah	$g_J$ (exp) ce travail	$g_J$ (th) ref [19]	$g_J$ (exp) autres auteurs
$2p_2 \quad 3p' \left[ \frac{1}{2} \right] 1$	1,3397 (6)	1,340	1,340 (3) [47]
$2p_4 \quad 3p' \left[ \frac{3}{2} \right] 2$	1,2983 (8)	1,301	1,298 (4) [47] 1,298 (15) [42]
$2p_5 \quad 3p' \left[ \frac{3}{2} \right] 1$	0,9932 (4)	0,985	0,994 (4) [47]
$2p_6 \quad 3p \left[ \frac{3}{2} \right] 2$	1,2321 (10)	1,230	1,232 (2) [47]
$2p_7 \quad 3p \left[ \frac{3}{2} \right] 1$	0,6779 (8)	0,680	0,678 (1) [47]
$2p_8 \quad 3p \left[ \frac{5}{2} \right] 2$	1,1364 (8)	0,136	1,137 (1) [47]
$3s_2 \quad 5s' \left[ \frac{1}{2} \right] 1$	1,2926 (10)	1,295	1,29 [48] 1,294 (10) [42]

(Les nombres indiqués entre parenthèses donnent l'incertitude sur le dernier chiffre).

Nous avons vérifié que dans les champs magnétiques utilisés le découplage de la structure fine était toujours largement négligeable : le calcul effectué par la méthode indiquée au § I-3c(  $\gamma$  ) montre que dans un champ de  $H_0 = 340$  Gs , champ magnétique maximum que nous avons utilisé pour l'étude des niveaux 2p, la différence entre l'énergie au second ordre en  $\mu_B H_0 / \Delta E$  (où  $\Delta E$  est l'écart de structure fine) et l'énergie au premier ordre est inférieure, pour tous les sous-niveaux Zeeman des niveaux considérés, à  $3 \cdot 10^{-5}$  (en valeur relative).

## Chapitre VI

MESURE DE STRUCTURES HYPERFINES DANS LE NEON PAR ABSORPTION A DEUX  
 PHOTONS SANS EFFET DOPPLER

---

A partir de l'expression de la probabilité de transition à deux photons (eq. 11 de la ref [ 59 ] ) , un calcul d'ordre de grandeur permettait de penser que l'on pouvait induire des transitions à deux photons dans le Néon à partir des niveaux métastables vers certains niveaux des configurations 4d et 5s. On trouve en effet dans le spectre du Néon une disposition des niveaux assez favorable : les niveaux de la configuration  $2p^5 3p$  se trouvent à peu près à mi-distance entre les métastables ( $2p^5 3s$ ) et les niveaux des configurations  $2p^5 4d$  et 5s. A ces transitions sont de plus associées des longueurs d'onde qui se trouvent dans le domaine de fonctionnement des lasers à Rhodamine 6G. Au début des expériences nous avons choisi de rechercher un signal sur la transition  $3s [3/2] 2$  (métastable, noté  $1s_5$  par Paschen )  $\rightarrow 4d' [5/2] 3$ , correspondant à l'absorption de deux photons à la longueur d'onde 5923 Å , voisine du maximum d'émission du laser à Rhodamine 6G. Le niveau  $3p' [3/2] 2$  ( $2p_4$ ) constitue dans ce cas un niveau relai assez proche de la résonance pour la transition à un photon, puisque la longueur d'onde de la transition  $4d' [5/2] 3 \rightarrow 3p' [3/2] 2$  est 5902 Å. On peut comparer cette distance à celle qui sépare le niveau relai de la résonance pour la transition  $3S \rightarrow 5S$  dans le sodium, qui est de l'ordre de 100 Å . Par rapport à la probabilité de transition  $3S \rightarrow 5S$  dans le sodium nous gagnons donc un facteur d'environ 25, qui compense les faibles valeurs des forces d'oscillateur des transitions mises en causes dans le néon, comparées à celles qui interviennent dans le sodium.

Par ailleurs , le niveau de départ n'est plus le fondamental mais un métastable, qu'il faut peupler par une décharge. Nous avons vite constaté que la population produite par la décharge dans le niveau  $4d' [5/2] 3$  était à l'origine d'un fond continu important. Même en hachant le laser

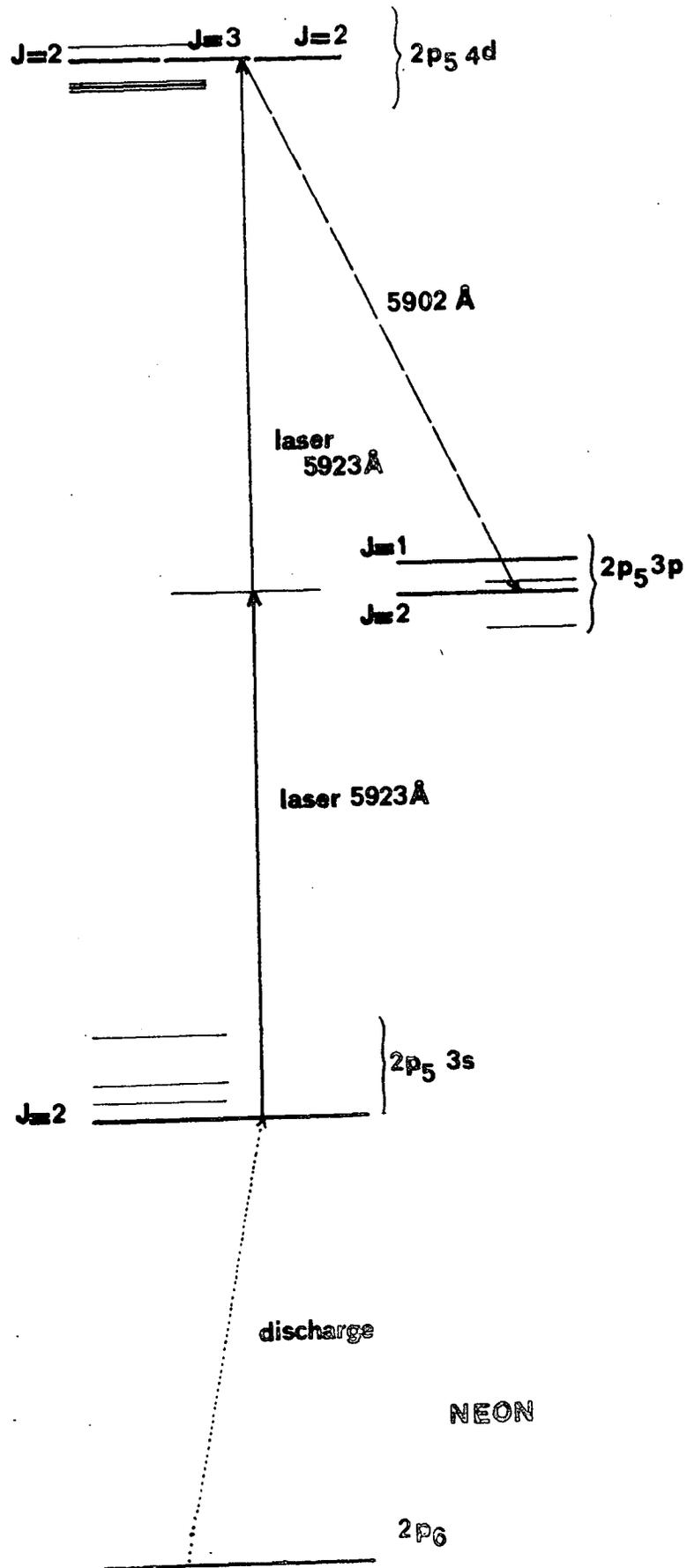


Figure VI-1

Diagramme simplifié des niveaux du Néon intervenant dans les expériences.

et en détectant la lumière de fluorescence à cette fréquence, le bruit dû à la décharge restait d'amplitude nettement plus grande que le signal prévu. Nous avons donc été conduits à travailler sur une post-décharge. Dès lors nous avons pu obtenir un signal de fluorescence correspondant à la transition à deux photons recherchée. Nous avons ensuite détecté les transitions à deux photons sur les transitions partant du même métastable vers les niveaux  $4d'$  voisins :  $4d' [5/2] 2$ ,  $4d' [3/2] 2$  et  $4d' [3/2] 1$ . Les niveaux du néon qui interviennent dans ces expériences sont représentés sur la figure VI-1.

Nous décrivons tout d'abord le montage expérimental puis nous présentons les résultats des mesures effectuées sur ces niveaux ; enfin, nous donnerons une interprétation spectroscopique de ces résultats, en particulier nous proposerons une explication du désaccord constaté sur les structures hyperfines des niveaux de  $J = 2$  entre nos valeurs expérimentales et les valeurs calculées de S. LIBERMAN.

#### VI-1 Le montage expérimental

Le montage expérimental est celui qui a été utilisé par F. BIRABEN, B. CAGNAC et G. GRYNBERG pour l'étude des transitions à deux photons dans le sodium, auquel nous avons apporté quelques modifications. Comme ce montage a déjà été détaillé dans plusieurs publications [66] [73] nous nous limiterons ici à en donner une description rapide (cf fig VI-2)

#### VI-1a Le laser et le dispositif de balayage de sa fréquence

Le laser utilisé est le laser à colorant monomode Spectra Physics (modèle 580) pompé par un laser à Argon fournissant 4W sur la raie verte  $5145 \text{ \AA}$ . Nous obtenons une puissance de 100 à 140 mW à  $5923 \text{ \AA}$  ce qui est suffisant pour nos expériences. L'étaillon Fabry-Pérot interne (à air) qui assure le fonctionnement en monomode a une épaisseur variable grâce à des cales piézo-électriques. L'un des miroirs du laser est également monté sur cale piézo-électrique. Deux boucles d'asservissement permettent d' "accrocher" la fréquence du laser sur le pic de transmission d'un

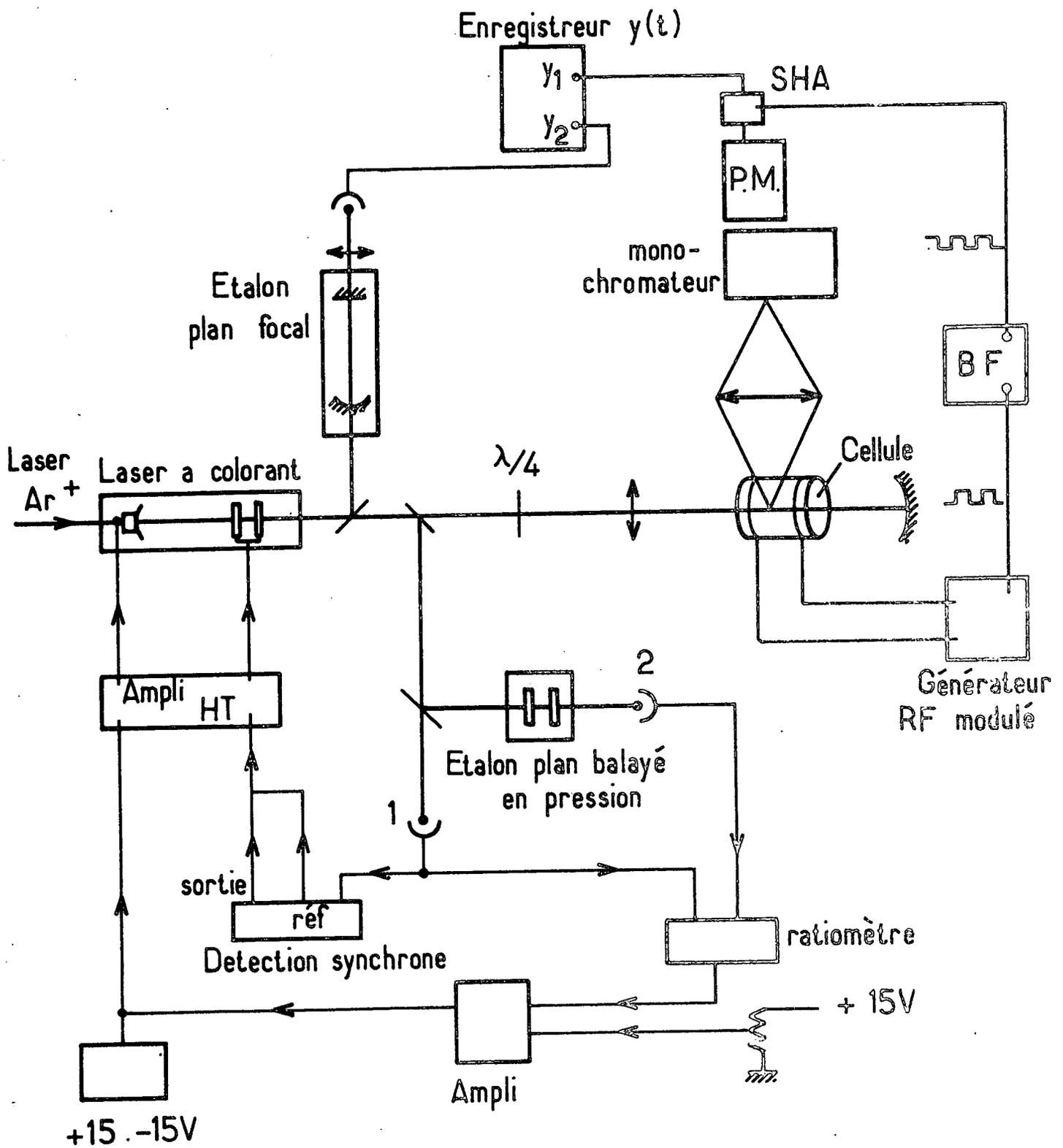


Figure VI-2

Montage expérimental pour l'absorption à deux photons sans effet Doppler.

Fabry-Pérot plan, externe, balayable en pression.

La première boucle asservit l'épaisseur de l'étalon interne sur la fréquence déterminée par la cavité du laser. Pour ce faire, on module légèrement l'épaisseur de l'étalon interne par l'intermédiaire de ses cales piezo-électriques ; si le mode du laser n'est pas centré sur la transmission du Fabry-Pérot interne il en résulte une modulation de l'intensité du laser; celle-ci constitue le signal d'erreur que l'on réinjecte avec une phase et un gain convenables sur les cales piézo-électriques de l'étalon interne. La deuxième boucle asservit la longueur de la cavité laser sur le flanc du pic de transmission du Fabry-Pérot plan externe : le signal d'erreur est constitué par la différence entre une tension fixe et l'intensité du laser transmise par le Fabry-Pérot (divisée par l'intensité totale pour éliminer l'effet des fluctuations d'intensité). Ce signal d'erreur est amplifié et envoyé sur la cale piézo-électrique portant le miroir du laser. Pour une puissance de 100 mW, les phénomènes de jitter donnent au mode du laser une largeur d'environ 10 MHz (sur les temps de l'ordre de la seconde). Le Fabry-Pérot plan de référence est placé dans une enceinte à vide où l'on peut pomper à l'aide d'une pompe rotative à deux étages, et faire ensuite entrer l'air de manière contrôlée avec une fuite micrométrique. Le balayage de fréquence réalisé en faisant ainsi croître la pression jusqu'à quelques dizaines de torr est pratiquement linéaire. Il est facile, si l'on veut avoir plus de précision, de calculer la correction de non-linéarité.

Pour étalonner le balayage en fréquence ainsi produit, on utilise les pics de transmission d'un étalon Fabry-Pérot "plan-focal" (note\*) de longueur fixe dont l'intervalle spectral libre est 75 MHz. Bien qu'il soit entièrement construit en Invar, sa dérive en température n'est pas tout à fait négligeable lorsque l'on mesure de faibles intervalles de fréquence, et nous avons fait dans ce cas les corrections nécessaires.

#### VI-1b La cellule, les dispositifs d'excitation et de détection

Les dispositifs d'asservissement et de mesure de fréquence ne prélèvent qu'une faible partie de l'intensité du faisceau laser. Le faisceau principal est focalisé à l'aide d'une lentille ( $f = 15$  cm) à l'intérieur de la

---

\*) L'intervalle spectral libre d'un tel Fabry-Perot est 4 fois plus petit que celui du Fabry-Perot plan de même longueur.

---

cellule puis renvoyé sur lui-même par un miroir concave. Pour éviter le couplage entre le faisceau retour et la cavité du laser, on interpose sur son trajet un isolateur optique. Le faisceau étant polarisé linéairement à la sortie du laser, nous avons utilisé comme isolateur optique une lame quart-d'onde pour travailler en polarisation circulaire ou un barreau de verre (FLINT E 0525 de SOVIREL) doué de pouvoir rotatoire . placé dans un champ magnétique convenable pour travailler en polarisation linéaire.

La cellule contenant le néon est un cylindre de 3cm de diamètre et 3 cm de longueur ; elle a été scellée après remplissage . La décharge est entretenue par des électrodes externes alimentées par un générateur à 14 MHz , dont la sortie est modulée en créneaux carrés à quelques KHz (la durée de vie du métastable est de l'ordre de la milliseconde dans nos conditions expérimentales). On détecte la lumière de fluorescence émise perpendiculairement au faisceau laser : on fait sur la fente d'entrée du monochromateur (Jobin Yvon HRS 2) l'image de la région de la cellule où est focalisé le faisceau laser. Comme nous l'avons dit, pour éliminer le signal de fluorescence dû à la décharge seule, le courant du photomultiplicateur (EMI 9658 R refroidi par effet Peltier) n'est transmis que pendant les phases d'extinction de la cellule, grâce à un amplificateur SHA 1A Analog Devices <sup>(note ★)</sup> . On lui applique une tension en créneaux carrés , en opposition de phase avec celle que l'on envoie sur le générateur 14 MHz et dont l'alternance négative est légèrement plus longue que l'alternance correspondante de la première (de manière à attendre la disparition complète de la population dans les niveaux excités et à éliminer l'effet des constantes de temps provenant des câbles coaxiaux de l'électronique de

---

★ ) Lorsqu'il est polarisé positivement ce type de composant transmet le signal d'entrée avec un gain de 1 ; lorsqu'il est polarisé négativement il garde en mémoire le signal qu'il avait à l'entrée juste avant le changement de polarisation.

---

détection . La tension de sortie du SHA 1A est enregistrée en fonction temps sur la première trace d'un enregistreur double trace (Bryans 26000 A 3) On enregistre simultanément les pics donnés par l'étalon Fabry-Pérot de référence (I.S.L. 75 MHz), lors du balayage de la fréquence du laser. La figure (VI-3) donne un exemple d'un tel enregistrement.

## VI-2 Les résultats expérimentaux : structures fines et hyperfines des niveaux 4d' .

Nous donnons ici les résultats des mesures de structures fines et hyperfines effectuées sur les niveaux 4d'. D'autres mesures également réalisées sur ces niveaux sont décrites dans les références [66] [68] [71]

### VI-2a Les structures fines

Les valeurs des intervalles de structure fine que nous avons obtenues sont les suivantes :

4d' [ 5/2 ] 3	- 4d' [ 5/2 ] 2	+ 27 729 ± 4 MHz
4d' [ 5/2 ] 3	- 4d' [ 3/2 ] 2	- 31 526 ± 5 MHz
4d' [ 5/2 ] 3	- 4d' [ 3/2 ] 1	- 355 831 ± 28 MHz

Le rapport signal/bruit obtenu sur le niveau 4d' [ 5/2 ] 3 est de l'ordre de 20; il est environ 2 fois meilleur que sur les niveaux de J=2 et 10 fois meilleur que sur le niveau de J=1. Aussi il était plus commode de prendre pour référence le niveau de J=3.

Vu l'ordre de grandeur des intervalles d'énergie , il n'est pas possible de les couvrir dans un balayage continu de la fréquence du laser (la céramique piézo-électrique du miroir du laser ne permet qu'un balayage de quelques GHz). L'expérience a donc été faite en déplaçant la fréquence du laser de manière discontinue et en comptant les ordres d'étalons Fabry-Pérot d'intervalle spectral libre convenablement choisi. La mesure des excédents fractionnaires correspondant à chacune des transitions avec l'étalon Fabry-Pérot de 75 MHz nous a ensuite permis d'obtenir les intervalles de structure fine avec une précision très supérieure à celle des déterminations antérieures effectuées par les méthodes de spectroscopie classique [74].

## VI-2b Les structures hyperfines

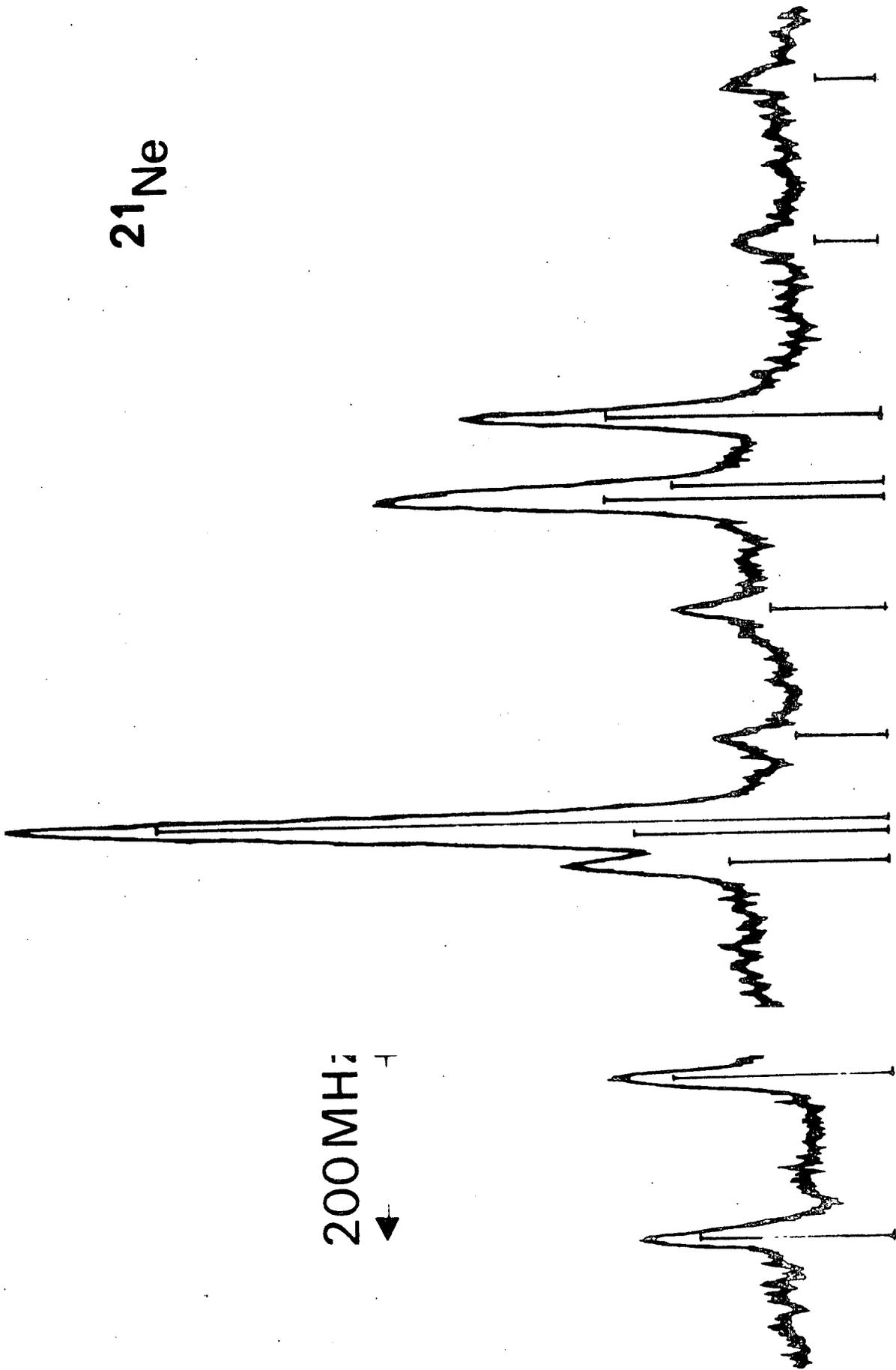
Remplaçant ensuite la cellule de  $^{20}\text{Ne}$  par une cellule remplie de  $^{21}\text{Ne}$  (pureté isotopique supérieure à 99%), nous avons enregistré les différentes composantes hyperfines des raies à deux photons aboutissant aux niveaux de  $J=3$  et de  $J=2$  (l'étude du niveau de  $J=1$  nécessite un montage plus sensible, qui est en cours de construction actuellement.). La structure hyperfine du niveau métastable est bien connue [23] et nous a servi à vérifier l'étalonnage en fréquence donné par l'étalon Fabry-Pérot de référence. Les figures (VI-3), (VI-4) et (VI-5) montrent les enregistrements correspondant aux niveaux  $4d' (5/2)3$ ,  $4d' (5/2)2$  et  $4d' (3/2)2$ . Le premier a été effectué avec un faisceau laser polarisé circulairement, les deux autres avec un faisceau polarisé linéairement.

Sur la partie inférieure des figures sont indiquées les intensités calculées des diverses composantes hyperfines (eq. IV-21 et IV-22). Le calcul préalable de ces intensités nous permet en effet, connaissant l'ordre de grandeur des constantes de structures hyperfines (cf ref [19]) d'identifier facilement les pics apparaissant sur les enregistrements.

L'accord entre intensités calculées sans tenir compte de la contribution de l'alignement (cf § IV-26) et les intensités expérimentales est satisfaisant. On le comprend aisément en examinant le tableau ci-dessous qui donne des intensités calculées en négligeant l'alignement (1), et en utilisant l'expression complète de la lumière de fluorescence (2) pour la transition métastable  $4d' \rightarrow (5/2)3$ .

	$\frac{1}{2} \frac{3}{2}$	$\frac{1}{2} \frac{5}{2}$	$\frac{3}{2} \frac{3}{2}$	$\frac{3}{2} \frac{5}{2}$	$\frac{3}{2} \frac{7}{2}$	$\frac{5}{2} \frac{3}{2}$	$\frac{5}{2} \frac{5}{2}$	$\frac{5}{2} \frac{7}{2}$	$\frac{5}{2} \frac{9}{2}$	$\frac{7}{2} \frac{3}{2}$	$\frac{7}{2} \frac{5}{2}$	$\frac{7}{2} \frac{7}{2}$	$\frac{7}{2} \frac{9}{2}$
(1)	0,14	0,21	0,29	0,12	0,31	0,08	0,37	0,35	0,27	0,002	0,06	0,36	1
(2)	0,12	0,19	0,29	0,12	0,27	0,09	0,38	0,35	0,24	0,002	0,06	0,38	1

On voit que les intensités obtenues dans les deux hypothèses sont assez peu différentes; sachant que les fluctuations de l'intensité du laser au cours de l'enregistrement atteignent souvent 10 à 20%, cette expérience ne nous fournit pas d'information sur l'existence éventuelle d'alignement dans les sous-niveaux hyperfins.

$^{21}\text{Ne}$ 200 MHz  
←

Enregistrement de la structure hyperfine de la transition métastable  $(J=2) \rightarrow 4d'(5/2)3$ . Sur la partie inférieure de la figure sont indiquées les intensités théoriques des composantes et les positions déduites des valeurs de A et B données dans le texte.

Figure VI-3

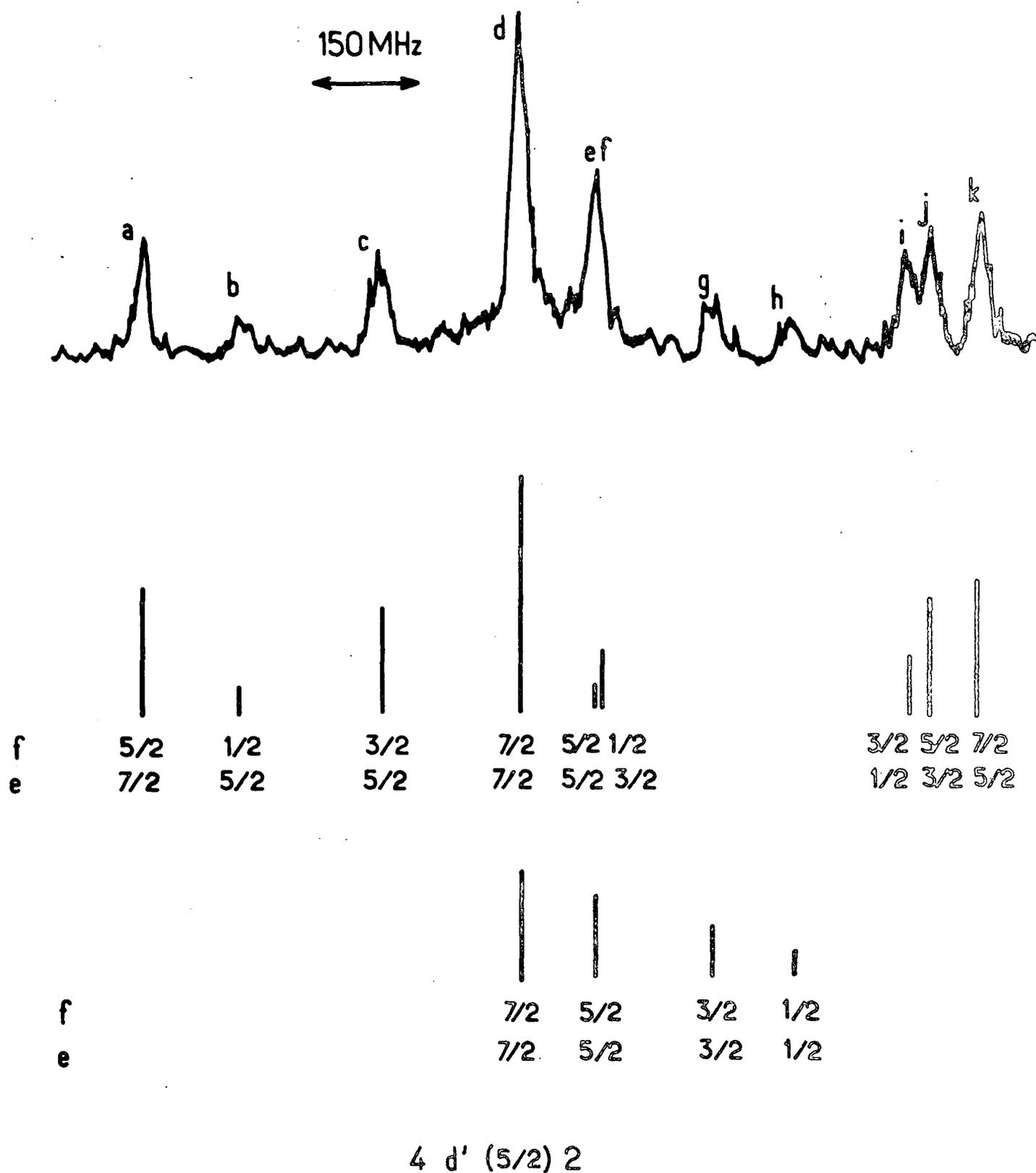
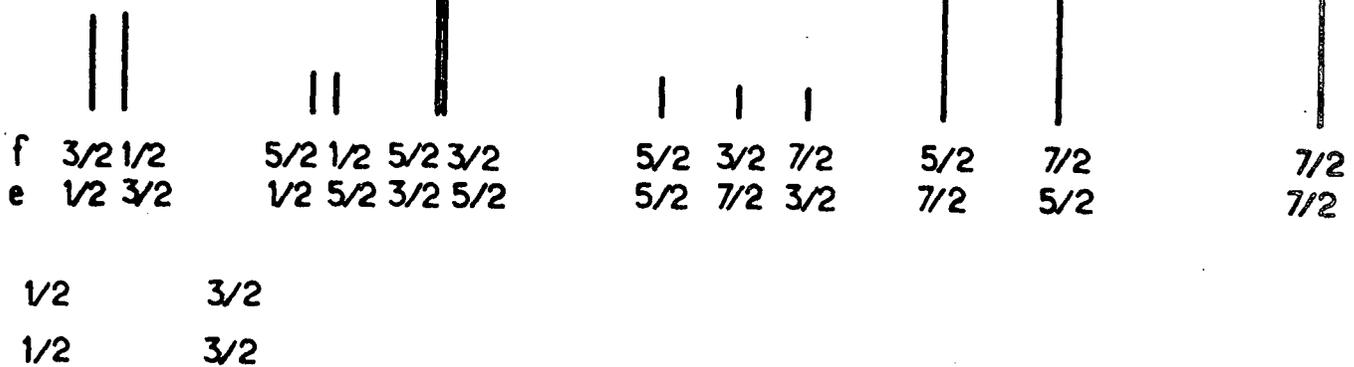
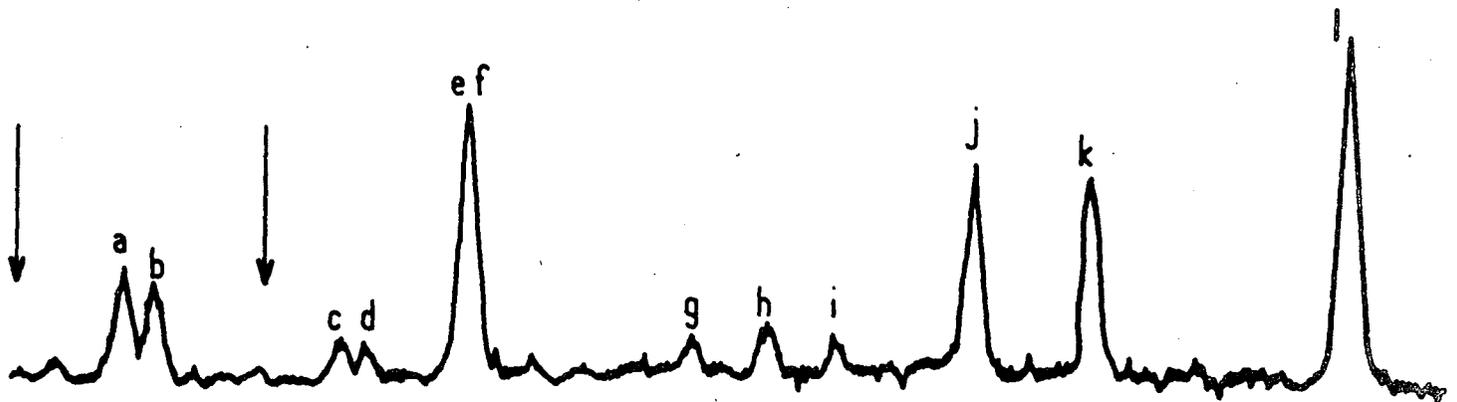


Figure VI-4

Enregistrement de la structure hyperfine de la transition métastable ( $J=2$ )  $4d'(5/2)2$ . Sur la partie inférieure de la figure sont indiquées les contributions aux intensités des termes de  $k=2$  de l'équation (IV-22) (1ère ligne) et des termes de  $k=0$  (2ème ligne).

150 MHz



4 d' (3/2) 2

Figure VI-5

Enregistrement de la structure hyperfine de la transition métastable  $(J=2) \rightarrow 4d'(3/2)2$ . Sur la partie inférieure de la figure sont indiquées les contributions aux intensités des termes de  $k=2$ . Les contributions des termes de  $k=0$  sont pratiquement nulles. Les flèches indiquent la position théorique des composantes  $1/2 \rightarrow 1/2$  et  $3/2 \rightarrow 3/2$ . Le calcul montre que la contribution du terme de  $k=2$  à leur intensité est nulle. Par ailleurs l'interférence entre les effets des différents sous-niveaux relais étant totalement destructive pour le terme de  $k=0$ , on n'observe pas ces composantes.

Dans le cas des niveaux de  $J=2$ , l'intensité des composantes hyperfines de la transition est calculée en tenant compte de la proximité de trois niveaux :  $3p' (3/2)2$ ,  $3p' (3/2)1$  et  $3p' (1/2)1$  (ou  $2p_4$ ,  $2p_5$  et  $2p_2$ ). L'interférence évoquée au § IV-2a se produit de manière constructive sur le terme  $k=2$  de la formule. (IV-22) et destructive sur le terme  $k=0$ . Les intensités des composantes  $F=1/2 \rightarrow F=1/2$  et  $F=3/2 \rightarrow F=3/2$ , pour lesquels la contribution des termes de  $k=2$  est nulle sont en conséquence beaucoup plus faibles que s'il n'y avait qu'un seul relai (cf ref[<sup>68</sup>]). Nous donnons ci-dessous les valeurs obtenues pour les intervalles hyperfins :

$4d' (5/2)3$	$F = 7/2$	$F = 9/2$	$998,8 \pm 2,6$ MHz
	$F = 5/2$	$F = 9/2$	$1832,2 \pm 3,0$ MHz
	$F = 3/2$	$F = 9/2$	$2452,2 \pm 3,7$ MHz
$4d' (5/2)2$	$F = 5/2$	$F = 7/2$	$1233,3 \pm 4$ MHz
	$F = 3/2$	$F = 5/2$	$902,5 \pm 10$ MHz
	$F = 1/2$	$F = 3/2$	$534,0 \pm 10$ MHz
$4d' (3/2)2$	$F = 7/2$	$F = 5/2$	$818,8 \pm 6,6$ MHz
	$F = 5/2$	$F = 3/2$	$602,6 \pm 7,7$ MHz
	$F = 3/2$	$F = 1/2$	$375,4 \pm 8,2$ MHz

Ces structures hyperfines n'avaient, à notre connaissance, jamais été mesurées. Pour les comparer aux prévisions théoriques de S. LIBERMAN [<sup>19</sup>], nous allons calculer les valeurs des constantes de structure dipolaire magnétique  $A$  et quadrupolaire électrique  $B$ .

### VI-3 Interprétation des structures hyperfines des niveaux $4d'$

---

Comme nous l'avons noté au § I 2-c ( $\alpha$ ), par suite des ordres de grandeur relatifs des structures fine et hyperfine, les intervalles hyperfins n'obéissent plus à la relation (I-12).

$$E(\alpha J F) = A(\alpha J) \frac{C_F}{2} + B(\alpha J) D_F$$

où  $C_F$  et  $D_F$  sont des coefficients donnés par (I-13 a) et (I-13 b).

Pour déduire les constantes A et B des données expérimentales, nous devons donc calculer les corrections du second ordre.

Nous avons donné au § I-2c la forme de ces corrections. Rappelons que nous avons négligé les corrections dues à l'interaction quadrupolaire électrique. Nous avons montré que pour un niveau  $\alpha J F$  la correction du second ordre se mettait sous la forme :

$$\delta E(\alpha J F) = \sum_{\alpha' J'} \frac{|\langle \alpha J I F m_F | \mathcal{H}_{DM} | \alpha' J' I F m_F \rangle|^2}{E_{\alpha J} - E_{\alpha' J'}}$$

Nous limiterons la somme sur les niveaux perturbateurs  $|\alpha' J' F\rangle$  aux niveaux  $4d'$  autres que celui étudié (les niveaux  $4d$  et  $5s$  sont beaucoup plus éloignés).

Pour ce calcul, nous considérerons les états propres associés aux niveaux  $4d'$  comme des états de Racah purs :

$$|4d' [K] J\rangle \simeq |j_1 = \frac{1}{2}, \ell = 2, K, J\rangle$$

Les éléments de matrice intervenant dans le calcul de la correction du second ordre à l'énergie du niveau  $4d' (K) J$  se mettent alors sous la forme (cf eq. I-20 à I-26).

$$\langle j_1 = 1/2, \ell = 2, K, J, I = 3/2, F m_F | \mathcal{H}_{DM} | \frac{1}{2} 2 K' J' \frac{3}{2} F m_F \rangle$$

$$= \sqrt{15} (-)^{F+1/2+K+K'} \sqrt{2K+1} \sqrt{2K'+1} \sqrt{2J+1} \sqrt{2J'+1}$$

$$\begin{Bmatrix} 1/2 & 1 & 1/2 \\ K' & 2 & K \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} K & 1 & K' \\ J' & 1/2 & J \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J & 3/2 & J' \\ 3/2 & F & 3/2 \end{Bmatrix} \langle j_1 = 1/2 || \vec{X} || j_1 = 1/2 \rangle$$

$$\text{avec } \vec{X} = a_{2p} \vec{N}_1$$

où  $a_{2p}$  est défini par (I 16a) et  $\langle \frac{1}{2} || \vec{N}_1 || \frac{1}{2} \rangle = 4\sqrt{\frac{2}{3}}$  (calculé à partir de I-26).

La seule grandeur radiale dont nous avons besoin est  $a_{2p}$ , qui peut être déterminée à partir de la valeur de la constante  $A(\alpha J)$  de l'un des niveaux  $4d'$  au moyen de l'expression (I-14)

$$A(\alpha J) = [J(J+1)(2J+1)]^{-1/2} \langle \alpha J || \vec{X} || \alpha J \rangle = [J(J+1)(2J+1)]^{-1/2} a_{2p} \langle \alpha J || \vec{N}_1 || \alpha J \rangle$$

Nous avons procédé par approximations successives : pour interpréter nos mesures sur le niveau  $4d'[5/2]3$ , nous avons calculé une première valeur des corrections au second ordre en utilisant la valeur de A de ce même niveau donnée par S. LIBERMAN [19]. A partir des intervalles hyperfins ainsi "corrigés", nous avons calculé une valeur expérimentale de A. Avec cette nouvelle valeur de A, nous avons recommencé le processus pour obtenir la valeur expérimentale définitive de A. Le deuxième processus correspond à une valeur de  $a_{2p} = -536$  MHz, que nous avons également utilisée pour calculer les corrections du second ordre sur les deux niveaux de  $J=2$  (note★)

Nous obtenons pour les corrections dues à l'interaction hyperfine au second ordre les valeurs suivantes (en MHz):

	F=9/2	F=7/2	F=5/2	F=3/2	F=1/2
$4d'[5/2]3$	0	-54	-54	-27	
$4d'[5/2]2$	-	-5	-8	-7	-6
$4d'[3/2]2$	-	+59	+57	+31	+5

★) Cette valeur de  $a_{2p}$  n'est pas celle que S. LIBERMAN [19] obtient dans le traitement classique de l'interaction hyperfine. Cela se traduit par le fait que la valeur de  $A(4d'[5/2]3)$  donnée par le traitement classique présente un certain désaccord avec notre valeur expérimentale alors que la valeur donnée par le traitement relativiste indiquée dans le tableau des résultats est nettement meilleure. Cependant, on peut remarquer que les niveaux  $4d'$  sont proches de niveaux de Racah purs : les composantes sur les états de  $j_1=3/2$  sont petites ; la contribution dominante aussi bien pour les valeurs des constantes de structure hyperfine que pour les corrections du second ordre est due aux termes en  $\langle 1/2 \parallel \vec{X} \parallel 1/2 \rangle$ . Si les niveaux étaient en couplage  $jK$  pur, la constante de proportionnalité entre  $A(4d'[5/2]3)$  et  $\langle 1/2 \parallel \vec{X} \parallel 1/2 \rangle$  serait indépendante de la forme de X et donc du fait que le traitement soit relativiste ou non ; on voit que dans notre cas, les valeurs de  $\langle 1/2 \parallel \vec{X} \parallel 1/2 \rangle$  déduites de  $A(4d'[5/2]5)$  dépendent peu de la forme de X et sont proches de celles que l'on obtiendrait par un traitement relativiste. La valeur de  $a_{2p}$  que nous avons choisie peut donc être considérée comme une valeur "effective" prenant partiellement en compte les effets relativistes. Les corrections du second ordre que nous calculons ainsi sont donc meilleures que celles que nous aurions pu déduire de la valeur  $a_{2p}$  "classique" de S. LIBERMAN (516 MHz).

Les valeurs des constantes de structures hyperfines que nous en déduisons sont données dans le tableau suivant, où on peut les comparer aux valeurs calculées par S. LIBERMAN.

(MHz)	A(exp)	B(exp)	A(th)	B(th)
$4d'[5/2]3$	$-235,9 \pm 0,5$	$+11 \pm 9$	$-234,0$	$+8,1$
$4d'[5/2]2$	$-355,4 \pm 1,2$	$+ 8 \pm 5$	$-327,3$	$+6,6$
$4d'[3/2]2$	$+231,4 \pm 1,6$	$+ 2 \pm 6$	$+206,1$	$+5,7$

On voit que les valeurs de A sont en très bon accord pour le niveau  $4d'[5/2]3$ ; l'accord est par contre beaucoup moins satisfaisant pour les niveaux de  $J=2$ .

D'après la comparaison que nous avons pu faire entre nos valeurs expérimentales et les valeurs de S. LIBERMAN pour les niveaux  $2p^5 3p$  et le niveau  $5s'[1/2]1 (3s_2)$ , on peut penser que les paramètres de structure hyperfine calculés soit "ab initio" soit à partir d'expériences antérieures n'ont pas à être modifiés, du moins en ce qui concerne ceux du coeur (cf § V 2-d). Nous avons donc tenté d'interpréter ce désaccord en modifiant les fonctions d'onde des niveaux de  $J=2$ .

La théorie de S. LIBERMAN [19] conduit à la décomposition suivante sur les états  $|j_1 K J \rangle$  :

$$(VI-1a) \quad |4d'[5/2]2\rangle = \psi_{5/2} = |1/2 5/2 2\rangle + 0,032 |3/2 5/2 2\rangle$$

$$(VI-1b) \quad |4d'[3/2]2\rangle = \psi_{3/2} = |1/2 3/2 2\rangle - 0,062 |3/2 3/2 2\rangle$$

Nous allons montrer que l'on peut rendre compte de nos valeurs de structure hyperfine en introduisant un mélange supplémentaire entre les états  $|1/2 5/2 2\rangle$  et  $|1/2 3/2 2\rangle$  : nous cherchons à ajuster les valeurs calculées des constantes A sur les valeurs expérimentales avec des fonctions d'onde de la forme suivante :

$$(VI-2a) \quad 4d'[5/2]2 = \left[ |1/2 5/2 2\rangle + 0,032 |3/2 5/2 2\rangle \right] \cos \theta - |1/2 3/2 2\rangle \sin \theta$$

$$(VI-2b) \quad 4d'[3/2]2 = \left[ |1/2 3/2 2\rangle - 0,062 |3/2 3/2 2\rangle \right] \cos \theta + |1/2 5/2 2\rangle \sin \theta$$

Les constantes A des niveaux  $4d' [5/2] 2$  et  $4d' [3/2] 2$  s'écrivent (cf I-14)

$$(VI-3a) \quad A(4d'[5/2]2) = \frac{a_{2p}}{\sqrt{J(J+1)(2J+1)}} \left[ \langle 1/2 \ 5/2 \ 2 \| \vec{N}_1 \| 1/2 \ 5/2 \ 2 \rangle \cos^2 \theta \right. \\ \left. + 0,064 \langle 1/2 \ 5/2 \ 2 \| \vec{N}_1 \| 3/2 \ 5/2 \ 2 \rangle \cos^2 \theta - \langle 1/2 \ 5/2 \ 2 \| \vec{N}_1 \| 1/2 \ 3/2 \ 2 \rangle 2 \sin \theta \cos \theta \right. \\ \left. + \langle 1/2 \ 3/2 \ 2 \| \vec{N}_1 \| 1/2 \ 3/2 \ 2 \rangle \sin^2 \theta \right]$$

$$(VI-3b) \quad A(4d'[3/2]2) = \frac{a_{2p}}{\sqrt{J(J+1)(2J+1)}} \left[ \langle 1/2 \ 3/2 \ 2 \| \vec{N}_1 \| 1/2 \ 3/2 \ 2 \rangle \cos^2 \theta \right. \\ \left. - 0,128 \langle 1/2 \ 3/2 \ 2 \| \vec{N}_1 \| 3/2 \ 3/2 \ 2 \rangle \cos^2 \theta + \langle 1/2 \ 3/2 \ 2 \| \vec{N}_1 \| 1/2 \ 5/2 \ 2 \rangle 2 \sin \theta \cos \theta \right. \\ \left. + \langle 1/2 \ 5/2 \ 2 \| \vec{N}_1 \| 1/2 \ 5/2 \ 2 \rangle \sin^2 \theta \right]$$

On a négligé dans les équations IV-3a et VI-3b les termes croisés provenant des petites composantes sur les états de  $j_1 = 3/2$ .

Nous donnons à  $a_{2p}$  la valeur de -536 MHz. On peut vérifier que pour  $\theta=0$  on retrouve bien pour  $A(\alpha J)$  les valeurs de S. LIBERMAN données dans le tableau précédent (cf note p158).

En remplaçant les  $A(\alpha J)$  par les valeurs que nous avons mesurées et en calculant les éléments de matrice réduits de  $N_1$  nous obtenons deux déterminations de  $\theta$  concordantes

$$\theta_1 = 11,6^\circ \quad \theta_2 = 11,7^\circ$$

d'où les coefficients de mélange des fonctions d'onde

$$\sin \theta = 0,20$$

$$\cos \theta = 0,98$$

Nous constatons donc l'existence d'un mélange important entre les états  $|1/2 \ 5/2 \ 2 \rangle$  et  $|1/2 \ 3/2 \ 2 \rangle$  ce qui conduit à penser qu'il existe une interaction, négligée par S. LIBERMAN capable de coupler des états de même  $j_1$  et de K différents. L'interaction électrostatique d'échange étant nulle pour ces niveaux, nous attribuons ce mélange au couplage spin-orbite ; la constante de couplage spin orbite  $\xi_{4d}$  avait été prise égale à zéro par S. LIBERMAN. Nous allons calculer la valeur de  $\xi_{4d}$  permettant

d'expliquer le mélange des fonctions d'onde que nous obtenons.

La matrice de l'interaction spin-orbite à l'intérieur des deux niveaux considérés peut s'écrire (voir par exemple ref [44] p. 161)

$$\begin{array}{cc} |1/2 \ 5/2 \ 2 \rangle & |1/2 \ 3/2 \ 2 \rangle \\ \left[ \begin{array}{cc} -\frac{14}{10} \xi_{4d} & \frac{\sqrt{6}}{5} \xi_{4d} \\ \frac{\sqrt{6}}{5} \xi_{4d} & \frac{9}{10} \xi_{4d} \end{array} \right] \end{array}$$

Dans la base  $\psi_{5/2} \ \psi_{3/2}$  (définie par VI-1a, VI-1b) les interactions autres que spin-orbite sont diagonales ; nous les représenterons par les constantes phénoménologiques  $\epsilon_{3/2}$  et  $\epsilon_{5/2}$  ; dans cette base les éléments de matrice de l'interaction spin-orbite sont sensiblement les mêmes que dans la base  $|1/2 \ 5/2 \ 2 \rangle, |1/2 \ 3/2 \ 2 \rangle$ . Nous devons donc diagonaliser la matrice

$$\begin{array}{cc} \psi_{5/2} & \psi_{3/2} \\ \left[ \begin{array}{cc} \epsilon_{5/2} - \frac{14}{10} \xi_{4d} & \frac{\sqrt{6}}{5} \xi_{4d} \\ \frac{\sqrt{6}}{5} \xi_{4d} & \epsilon_{3/2} + \frac{9}{10} \xi_{4d} \end{array} \right] \end{array}$$

et nous déterminerons  $\xi_{4d}$  en identifiant ses vecteurs propres à ceux que nous venons d'obtenir. On montre aisément que les composantes  $(\alpha, \beta)$  du vecteur propre associé à la valeur propre  $E_{5/2}$  vérifient la relation

$$\frac{\sqrt{6}}{5} \xi_{4d} = (E_{3/2} - E_{5/2}) \alpha \cdot \beta$$

Nous connaissons  $E_{5/2} - E_{3/2}$ , que nous avons mesuré (cf § VI-2a)

On obtient :

$$\xi_{4d} = 0,79 \text{ cm}^{-1}$$

C'est une valeur faible par rapport aux paramètres qui interviennent dans l'interaction électrostatique et le couplage spin-orbite du coeur. Elle

ne conduit à des effets observables dans la configuration 4d que par suite des faibles distances en énergie entre les niveaux.

Notons que l'interprétation du mélange des fonctions d'onde par l'effet du couplage spin-orbite de l'électron externe n'est qu'approchée. En effet C. LHUILLIER [72] a montré que d'autres interactions (spin-spin et spin-autre orbite) pouvaient également jouer un rôle dans la configuration 4d. Cependant l'ordre de grandeur de notre résultat est tout à fait compatible avec ceux de C. LHUILLIER. Pour être rigoureux il faudrait complètement reprendre le calcul des intégrales radiales et des fonctions d'onde. Un tel traitement est en cours actuellement [76].

## Conclusion

Nous avons donc obtenu un certain nombre de données spectroscopiques nouvelles dans plusieurs configurations du Néon, et nous avons montré les informations que l'on pouvait en déduire sur les diverses interactions électron-noyau et électron-électron à l'intérieur de l'atome.

Nous avons montré comment les méthodes "classiques" de spectroscopie hertzienne peuvent dans le cas du Néon, être utilisées en pompage optique laser, et donner des résultats dont la précision est la précision habituelle de ce genre de méthodes, uniquement limitée par la largeur des cohérences hertziennes dans le niveau considéré.

Les expériences que nous avons réalisées par absorption de deux photons sur le néon en collaboration avec G. GRYNBERG et F. BIRABEN, ont tout d'abord mis l'accent sur les riches perspectives d'avenir de cette nouvelle méthode spectroscopique, en dehors des cas du sodium [17] [62] et de l'hydrogène [63]. Depuis les expériences que nous avons présentées dans ce mémoire, d'autres ont d'ailleurs été effectuées et de nouveaux résultats ont été obtenus dans d'autres configurations du Néon.

Le prolongement de ce travail pourrait être envisagé dans plusieurs directions. Nombreuses sont encore les informations intéressantes que l'on peut obtenir dans le Néon et les autres gaz rares par l'une des deux méthodes que nous avons employées.

Les méthodes de spectroscopie hertzienne sont particulièrement bien adaptées à l'étude d'un très grand nombre de problèmes (comme par exemple les études de niveaux fondamentaux et métastables à longue durée de vie). Il existe en revanche toute une classe d'information qui ne peuvent être obtenues que par la méthode d'absorption à deux photons; citons les études de déplacements isotopiques [71], les mesures de fréquences de transitions optiques [63]. De plus l'absorption à deux photons fournit un moyen d'atteindre et d'étudier certains niveaux excités avec une efficacité comparable à l'excitation par échelons.

A l'heure actuelle, la technologie des lasers monomodes balayables et de forte puissance lumineuse est encore à ses débuts, mais on peut espérer que dans un proche avenir, l'utilisation de lasers pulsés fournissant une énergie importante sur des pulses de durée assez longue (de manière que le mode du laser soit fin) permettra de s'affranchir facilement de la nécessité de disposer d'un "niveau relai" assez voisin de la résonance pour la transition à un photon. Le choix des niveaux étudiés ne sera plus limité par la proximité d'un niveau relai intermédiaire et on peut envisager l'étude de régions mal connues du spectre des atomes, comme niveaux de Rydberg ou les états auto-ionisants.

## Appendice 1

Cet appendice se compose de trois parties relatives à des points particuliers du chapitre II.

Nous étudions tout d'abord la quantité  $\Delta\Gamma_2$  introduite au § II-2d (la polarisation du laser est supposée linéaire).

Nous justifions ensuite la résolution du système (II-46 - 47 - 48) donnée au § II-2 e.

Enfin nous abordons le cas où , le niveau inférieur a ayant un moment cinétique nul, des cohérences hyperfines  $\rho_{m_I m'_I}$  peuvent être non négligeables dans les champs magnétiques où se produisent les croisements du niveau b.

1- Etude de  $\Delta\Gamma_2$ 

Rappelons que nous avons posé :

$$(II-42) \quad \Delta\Gamma_1 = \frac{\gamma}{2} (B_{f_1 f_1} + B_{f_2 f_2})$$

$$(II-43) \quad \Delta\Gamma_2 = -2\gamma \sum_{gm_G} \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma A_{gg}} \left[ D_{f_1 g}^2 D_{f_2 g}^2 - D_{f_1 g} D_{g f_2} B_{f_1 f_2} (t_{g f_1} + t_{g f_2}) \right] \frac{\gamma_{ba}}{2\Gamma_b}$$

Remarquons que  $\Delta\Gamma_1$  est toujours positif.

Nous allons montrer que chacun des deux termes de l'expression de  $\Delta\Gamma_2$  donnée ci-dessus est en valeur absolue inférieure à  $\Delta\Gamma_1$ . La largeur du croisement étant donnée, à cet ordre en  $\gamma$  par  $\Gamma'_b = \Gamma_b + \Delta\Gamma_1 + \Delta\Gamma_2/2$  on vérifie bien que l'effet du laser se traduit par une relaxation supplémentaire.

a- Comparons à  $\Delta\Gamma_1, \Delta\Gamma'_2$  défini par :

$$\Delta\Gamma'_2 = -2\gamma \sum_{gm_G} \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma A_{gg}} D_{f_1 g}^2 D_{f_2 g}^2$$

chacun des termes de la somme sur  $gm_G$  est positif ( $A_{gg}$  est positif) donc  $\Delta\Gamma'_2$  est négatif.

Cherchons le signe de  $\Delta\Gamma_1 - |\Delta\Gamma_2|$

$$\begin{aligned} \Delta\Gamma_1 - |\Delta\Gamma_2| &= \frac{\gamma}{2} \sum_{gm_G} \left[ D_{f_1g}^2 + D_{f_2g}^2 \right] - 2\gamma \sum_{gm_G} \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma Agg} D_{f_1g}^2 D_{f_2g}^2 \\ &= \gamma \sum_{gm_G} \left[ \frac{1}{2} \left( D_{f_1g}^2 + D_{f_2g}^2 \right) - 2 \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma Agg} D_{f_1g}^2 D_{f_2g}^2 \right] \end{aligned}$$

Chacun des termes de cette somme est positif. En effet si on remplace Agg par son expression en fonction de D (II-30),

$$\begin{aligned} &\left( \frac{\Gamma_a + \gamma Agg}{\gamma} \right) \frac{1}{2} \left( D_{f_1g}^2 + D_{f_2g}^2 \right) - 2 D_{f_1g}^2 D_{f_2g}^2 \\ &= \frac{\Gamma_a}{2\gamma} \left( D_{f_1g}^2 + D_{f_2g}^2 \right) + \frac{1}{2} \left[ \sum_f D_{fg}^2 \right] \left( D_{f_1g}^2 + D_{f_2g}^2 \right) - 2 D_{f_1g}^2 D_{f_2g}^2 \end{aligned}$$

Or la somme sur f contient en particulier  $f_1$  et  $f_2$ .

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} \left[ \sum_f D_{fg}^2 \right] \left( D_{f_1g}^2 + D_{f_2g}^2 \right) &= \frac{1}{2} \left[ 2 D_{f_1g}^2 D_{f_2g}^2 + D_{f_1g}^4 + D_{f_2g}^4 + \text{autres termes} \geq 0 \right] \\ &> 2 D_{f_1g}^2 D_{f_2g}^2 \end{aligned}$$

On a donc bien  $\Delta\Gamma_1 - |\Delta\Gamma_2| > 0$

Dans le cas où  $\gamma_{ba} \ll \Gamma_b$ ,  $\Delta\Gamma_2 \sim \Delta\Gamma_2'$  et comme  $\Delta\Gamma_2'$  est négatif,  $\Delta\Gamma_2$  l'est également, ce qui justifie l'allure de la figure donnée dans le texte au § II-2d.

b- Comparons maintenant à  $\Delta\Gamma_1$ ,  $\Delta\Gamma_2''$  défini par

$$\Delta\Gamma_2'' = 2\gamma \sum_{gm_G} \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma Agg} D_{f_1g} D_{gf_2} B_{f_1f_2} (t_{gf_1} + t_{gf_2}) \frac{\gamma_{ba}}{2\Gamma_b}$$

On a  $|B_{f_1 f_2}| < \frac{1}{2} (B_{f_1 f_1} + B_{f_2 f_2})$

En effet, en remplaçant  $B_{f_1 f_2}$ ,  $B_{f_1 f_1}$  et  $B_{f_2 f_2}$  à l'aide de (II-29)

$$\begin{aligned} \frac{1}{2} (B_{f_1 f_1} + B_{f_2 f_2}) - |B_{f_1 f_2}| &= \sum_g \frac{1}{2} (D_{f_1 g}^2 + D_{f_2 g}^2) - \left| \sum_g D_{f_1 g} D_{g f_2} \right| \\ &\geq \sum_g \frac{1}{2} (D_{f_1 g}^2 + D_{f_2 g}^2) - |D_{f_1 g} D_{g f_2}| \geq 0 \end{aligned}$$

Montrons maintenant que

$$\left| \frac{\Delta \Gamma_2''}{\gamma B_{f_1 f_2}} \right| = \left| 2 \sum_{g \in G} \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma A_{gg}} D_{f_1 g} D_{g f_2} (t_{g f_1} + t_{g f_2}) \frac{\gamma_{ba}}{2\Gamma_b} \right| \leq 1$$

Comme  $\gamma_{ba} \leq \Gamma_b$ , on a :

$$\begin{aligned} \left| \frac{\Delta \Gamma_2''}{\gamma B_{f_1 f_2}} \right| &= \left| 2 \sum_{g \in G} \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma A_{gg}} D_{f_1 g} D_{g f_2} (t_{g f_1} + t_{g f_2}) \frac{\gamma_{ba}}{2\Gamma_b} \right| \\ &\leq \sum_{g \in G} \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma A_{gg}} |D_{f_1 g} D_{g f_2}| (t_{g f_1} + t_{g f_2}) \end{aligned}$$

Or (cf ref [54] [55]) on peut remarquer que :

$$\sum_{g \in G} t_{g f_1} = 1$$

Nous cherchons donc le signe de

$$\sum_{g \in G} \left[ \frac{\gamma}{\Gamma_a + \gamma A_{gg}} |D_{f_1 g} D_{g f_2}| (t_{g f_1} + t_{g f_2}) - \frac{1}{2} (t_{g f_1} + t_{g f_2}) \right]$$

Or chaque terme de cette somme est négatif. En effet, en multipliant par  $\Gamma_a + \gamma A_{gg}$ , on obtient :



Dans le cas où les deux niveaux sont des niveaux excités (a pouvant éventuellement être métastable) tous les  $\gamma_a^i$  et  $\gamma_b^i$  sont strictement positifs. Nous n'aborderons pas ici le cas où a est le niveau fondamental, qui nécessite un traitement un peu à part.

Le déterminant de la matrice  $[\Gamma]$  est donc non nul, et le système (1) a une solution stationnaire positive

$$\rho_p^{(0)} = [\Gamma]^{-1} [\Lambda]$$

b- Cherchons maintenant la solution du système (II-46 -47 -48) dans un champ magnétique  $H_1$  suffisamment éloigné du champ  $H_0$  où se produit le croisement pour que la cohérence  $\rho_c$  soit négligeable (nous supposons cependant que la variation des fonctions d'onde entre  $H_1$  et  $H_0$  est très faible). Le système s'écrit alors simplement

$$(2) \quad \frac{d}{dt} \rho_p = -[\Gamma] \rho_p - \gamma[M] \rho_p + [\Lambda]$$

Nous allons montrer que les populations restent toujours finies, quelle que soit la valeur des éléments  $\lambda_i$  du vecteur colonne  $[\Lambda]$  ( $\lambda_i > 0$ ). Nous pourrions alors en déduire que les éléments diagonaux de la matrice  $[\Gamma] + \gamma[M]$  mise sous forme triangulaire sont nécessairement positifs. En effet dans le cas contraire on obtiendrait une croissance exponentielle (élément diagonal négatif) ou linéaire (élément diagonal nul) d'une combinaison linéaire de populations, ce qui est incompatible avec le fait que les populations gardent des valeurs finies.

Pour montrer que les populations restent toujours finies, nous faisons un raisonnement analogue à celui de C. COHEN-TANNOUJJI et J.P. BARRAT dans la ref.[35].

L'évolution de la population  $\rho_{ff}$  d'un sous niveau quelconque  $f m_f$  de a ou b sous l'effet du laser s'écrit

$$(3) \quad \frac{d}{dt} \rho_{ff} = -\Gamma_{ff} \rho_{ff} + \sum_{f' \neq f} \Gamma_{ff'} \rho_{f'f'} + \lambda_f - \gamma A_{ff} \rho_{ff} + \gamma \sum_{g m_g} |D_{fg}|^2 \rho_{gg}$$

où la première ligne représente l'effet de la décharge et de la relaxation par émission spontanée et collisions et la deuxième ligne l'effet du laser. La somme sur  $g m_G$  porte sur les sous-niveaux de b (ou a) si  $f m_F$  appartient à a (ou b). En l'absence de laser toutes les populations étaient positives ou nulles. Lorsque l'on a branché le laser, soit  $t_1$  le premier instant où l'une des populations s'annule. L'équation ci-dessus montre que sa dérivée est alors égale à

$$\sum_{f' \neq f} \Gamma_{ff'} \rho_{f',f'} + \lambda f + \gamma \sum_{g m_G} D_{fg}^2 \rho_{gg}$$

quantité qui est positive ou nulle puisque les autres populations sont  $\geq 0$ .

Aucune population ne peut donc devenir négative. Si nous démontrons maintenant que la somme des populations reste finie, nous aurons démontré que toutes les populations restent finies.

D'une part, la somme des populations est invariante sous l'effet du laser. En effet l'évolution de la matière densité totale des deux niveaux a et b sous l'effet du laser s'écrit :

$$\left[ \frac{d}{dt} \rho \right]_{\text{laser}} = -i \left[ \mathcal{H}_I, \rho \right] \quad (\mathcal{H}_I \text{ est l'hamiltonien d'interaction avec le laser})$$

La trace d'un commutateur étant nulle, la trace de  $\rho$  c'est-à-dire la somme des populations est constante. Le bilan d'arrivée et de départ sur la somme des populations des sous-niveaux de a et b s'écrit donc :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \sum_{f m_F} \rho_{ff} &= \sum_{f m_F} \left[ -\Gamma_{ff} \rho_{ff} + \sum_{f' m'_F} \Gamma_{ff'} \rho_{f',f'} + \lambda_f \right] \\ &= \sum_{f m_F} -\Gamma_{ff} \rho_{ff} + \sum_{\substack{f m_F \\ f' m'_F}} \Gamma_{ff'} \rho_{f',f'} + \lambda_f \end{aligned}$$

soit en échangeant f et f' dans la deuxième sommation

$$= \sum_{f m_F} \left[ -\Gamma_{ff} + \sum_{f' m'_F} \Gamma_{f',f} \right] \rho_{ff} + \sum_{f m_F} \lambda_f$$

Or les deux niveaux étant des niveaux excités, on a :

$$(4) \quad \Gamma_{ff} \geq \sum_{f' m'_F} \Gamma_{f',f}$$

l'égalité se produit si le niveau supérieur b ne peut se désexciter que vers le niveau a ; on a alors  $\gamma_{ba} = \Gamma_b$ .

Plaçons nous tout d'abord dans le cas où

$$\Gamma_{ff} > \sum_{f',m',F} \Gamma_{f',f}$$

Posons  $a_{ff} = \Gamma_{ff} - \sum_{f',m',F} \Gamma_{f',f}$  et appelons a le plus petit des  $a_{ff}$ . Alors

$$\frac{d}{dt} \sum_{fm_F} \rho_{ff} \leq - a_{ff} \sum_{fm_F} \rho_{ff} + \sum_{fm_F} \lambda_f$$

La somme des populations est bornée. En effet il existe une valeur de  $\sum_{fm_F} \rho_{ff}$  pour laquelle

$$- a_{ff} \sum_{fm_F} \rho_{ff} + \sum_{fm_F} \lambda_f < 0$$

et donc pour laquelle la dérivée est négative. La somme des populations se met alors à décroître. Lorsque , pour un certain nombre de sous-niveaux on

$$a : \quad \Gamma_{ff} = \sum_{f',m',F} \Gamma_{f',f}$$

on peut étendre le raisonnement précédent. En effet, appelons  $f_1 m_{F_1}$  les sous-niveaux du système pour lesquels l'égalité ne se produit pas dans la relation

(4) et  $a_1$  le plus petit des  $a_{f_1 f_1} = \Gamma_{f_1 f_1} - \sum_{f',m',F} \Gamma_{f',f_1}$ . On a

$$(5) \quad \frac{d}{dt} \sum_{fm_F} \rho_{ff} \leq - a_1 \sum_{f_1 m_{F_1}} \rho_{f_1 f_1} + \sum_{fm_F} \lambda_f$$

Supposons qu'une ou plusieurs populations deviennent très grandes. Si ces populations font partie de l'ensemble  $f_1 m_{F_1}$ , la dérivée de  $\sum_{fm_F} \rho_{ff}$  devient nécessairement négative à un instant  $t_1$ . La somme de toutes les populations est donc bornée.

Si maintenant c'est la population  $\rho_{f',f}$ , d'un niveau vérifiant l'égalité (4) qui devient très grande, l'équation (3) montre que la population d'un certain nombre de niveaux du type  $f_1 m_{F_1}$  devient très grande également : en effet pour une valeur suffisante  $\rho_{f',f}$ ,  $\frac{d}{dt} \rho_{f_1 f_1}$  est positive et  $\rho_{f_1 f_1}$  croît. L'équation (5) montre alors que la dérivée

de la somme des populations devient nécessairement négative à un instant  $t$  et donc que la somme des populations est encore bornée.

Nous avons donc montré que chacune des populations reste finie. Donc le déterminant de la matrice  $\{ [\Gamma] + \gamma[M] \}$  est non nul et cette matrice est inversible.

c- Montrons maintenant qu'au point de croisement la cohérence garde une valeur finie, d'où nous pourrions déduire que la largeur  $\Gamma_b'^2$  définie par (II-56) est bien strictement positive.

On balaye le champ magnétique depuis la valeur  $H_1$  où  $|\rho_c| \ll 1$  jusqu'au croisement de niveaux. Montrons que les populations restent encore finies. Les populations qui dépendent directement de la cohérence sont celles des sous-niveaux qui se croisent,  $\rho_{f_1 f_1}$  et  $\rho_{f_2 f_2}$  dans le niveau  $b$ , et les populations des sous-niveaux de  $a$ ,  $\rho_{gg}$ . Or en ce qui concerne  $\rho_{f_1 f_1}$  et  $\rho_{f_2 f_2}$ , on a :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{f_1 f_1} &= \text{même second membre que (3)} \\ &\quad - \frac{\gamma}{2} B_{f_1 f_2} (\rho_{f_1 f_2} + \rho_{f_2 f_1}) \end{aligned}$$

Utilisant le fait que  $|\rho_{f_1 f_2}| < \sqrt{\rho_{f_1 f_1} \cdot \rho_{f_2 f_2}}$  (la matrice densité est définie positive) on peut refaire le même raisonnement que celui du § b.

Par ailleurs, pour les sous-niveaux de  $a$

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho_{gg} &= \left[ \frac{d}{dt} \rho_{gg} \right]_{\text{relaxation}} + \lambda_g \\ &\quad - \gamma A_{gg} + \gamma \sum_{f_m f} |D_{gf}|^2 \rho_{ff} + \gamma D_{f_1 g} D_{gf_2} (\rho_{f_1 f_2} + \rho_{f_2 f_1}) \end{aligned}$$

où la somme sur  $f_m f$  porte sur les sous-niveaux de  $b$ .

$$\text{Or } |D_{f_1 g}|^2 \rho_{f_1 f_1} + |D_{f_2 g}|^2 \rho_{f_2 f_2} \geq |D_{f_1 g} D_{gf_2}| (\rho_{f_1 f_2} + \rho_{f_2 f_1})$$

En effet :

$$|\rho_{f_1 f_2} + \rho_{f_2 f_1}| \leq 2 \sqrt{\rho_{f_1 f_1} \cdot \rho_{f_2 f_2}}$$

Donc

$$\begin{aligned} & \left[ |D_{f_1g}|^2 \rho_{f_1f_1} + |D_{f_2g}|^2 \rho_{f_2f_2} \right]^2 - (D_{f_1g} D_{f_2g})^2 (\rho_{f_1f_2} + \rho_{f_2f_1})^2 \\ \geq & \left[ |D_{f_1g}|^2 \rho_{f_1f_1} + |D_{f_2g}|^2 \rho_{f_2f_2} \right]^2 - 4 |D_{f_1g}|^2 \rho_{f_1f_1} |D_{f_2g}|^2 \rho_{f_2f_2} \\ \geq & \left[ |D_{f_1g}|^2 \rho_{f_1f_1} - |D_{f_2g}|^2 \rho_{f_2f_2} \right]^2 > 0 \end{aligned}$$

La dérive de  $\rho_{gg}$  est donc encore positive lorsque  $\rho_{gg}$  s'annule et le raisonnement précédent est encore valable. Les populations sont donc encore positives ou nulles. Le bilan sur la somme des populations n'étant pas modifié par l'introduction de la cohérence, nous avons donc montré que les populations restaient finies.  $\rho_c$  est donc également borné puisque :

$$|\rho_c| < \sqrt{\rho_{f_1f_1} \cdot \rho_{f_2f_2}}$$

Le système (II 46- 47- 48) a donc une solution stationnaire finie, ce qui implique que le dénominateur apparaissant dans (II-52) est strictement positif ; ceci étant en particulier vrai pour  $\Omega = 0$ , on a :

$$\left( \Gamma_{CN} + \Delta\Gamma_1 \right) \left( \Gamma_{CN} + \Delta\Gamma_1 - 2\gamma^2 [B] \left[ (\Gamma) + \gamma(M) \right]^{-1} [A] \right) > 0$$

Ce qui est le résultat annoncé.

### 3- Etude du cas où $J_a = 0$

Lorsque  $J_a = 0$ , les cohérences hyperfines dans le niveau inférieur évoluent à la fréquence  $\omega_I \sim \mu_N H_0$  ou à des fréquences multiples de  $\omega_I$  ( $\mu_N$  est le magnéton nucléaire,  $H_0$  le champ magnétique où se produit le croisement étudié du niveau a). La cohérence  $\langle f_{1m_F} | \rho | f_{2m_F} \rangle$  évolue à une fréquence moyenne nulle. On peut dès à présent<sup>1</sup> prévoir<sup>2</sup> que lorsque  $\Gamma'_a \sim \omega_I$  (où  $\Gamma'_a$  est l'inverse de la durée de vie du niveau a, compte tenu de l'interaction avec le laser) une circulation de cohérence sera possible entre les niveaux b et a, et qu'il en résultera un shift de la résonance du niveau b [36] .

Nous présentons ici les résultats dans le cas particulier suivant : nous prenons une polarisation du laser linéaire  $\sigma$  (perpendiculaire au champ magnétique) et nous négligeons l'effet du transfert par émission spontanée devant l'émission stimulée :  $\gamma_{ba} \ll \gamma$ .

Dans cette géométrie, on sait qu'il ne peut y avoir de couplage entre les éléments de matrice  $\rho_{m_F m'_F}$  et  $\rho_{m_I m'_I}$  que si  $(m_F - m'_F) - (m_I - m'_I) = 0$  ou  $\pm 2$ . Lorsque  $I=1/2$ , il n'y a pas de circulation de cohérence. Prenons  $I=3/2$ , qui est le spin nucléaire du néon. Si  $J_a = 0$ , on a nécessairement  $J_b = 1$  et nous avons vu qu'il y a alors 2 croisements de  $\Delta m_F = 2$ . Nous nous limiterons ici à l'étude du croisement  $C_1$  qui se produit entre les sous-niveaux  $(5/2, 5/2)$  et  $(3/2, 1/2)$ . Les états propres associés se décomposent sur les états  $m_I m_J$  suivants :

$$| f = 5/2, 5/2 \rangle = | m_I = 3/2, m_J = 1 \rangle$$

$$| f = 3/2, 1/2 \rangle = \alpha_{-1} | m_I = 3/2, m_J = -1 \rangle + \alpha_0 | m_I = 1/2, m_J = 0 \rangle + \alpha_1 | m_I = -1/2, m_J = 1 \rangle$$

Par suite des règles de sélection, la cohérence  $\langle 5/2, 1/2 | \rho_b | 3/2, 1/2 \rangle$  n'est couplée qu'à une seule cohérence du niveau a,  $\langle 3/2 | \rho_a | -1/2 \rangle$ .

Posons  $\rho_c = \langle f_1 = 5/2, m_{F_1} = 5/2 | \rho_b | f_2 = 3/2, m_{F_2} = 1/2 \rangle$

$$\rho_c = \langle m_I = 3/2 | \rho_a | m_I = -1/2 \rangle$$

On peut écrire un système d'équations analogue à II(46, 47, 48) décrivant l'évolution de  $(\rho_c, \rho'_c, \rho_p)$ .

$$\frac{d}{dt} \rho_p = -[\Gamma] \rho_p - \gamma[M] \rho_p + \gamma[A] (\rho_c + \rho_c^*) + \gamma[A'] (\rho'_c + \rho_c'^*)$$

$$\frac{d}{dt} \rho_c = -(\Gamma_{CN} + \Delta\Gamma_1 + i\Omega) \rho_c + \gamma[B] \rho_p + \Delta\Gamma_3 \rho'_c$$

$$\frac{d}{dt} \rho'_c = -(\Gamma_a + \Delta\Gamma_2 + i\omega) \rho'_c + \gamma[B'] \rho_p + \Delta\Gamma_3 \rho_c$$

où, par rapport au § II-2 e, nous avons introduit les notations supplémentaires suivantes :

$\Gamma_a$  est le temps de relaxation du niveau a

$[A']$  et  $[B']$  sont les vecteurs ligne et colonne représentant le couplage entre les populations et  $\rho'_c$

$\Delta\Gamma_2$  est le coefficient d'élargissement de  $\rho'_c$  dû à l'absorption

$\Delta\Gamma_3$  est le coefficient de couplage par le laser entre  $\rho_c$  et  $\rho'_c$

$\omega$  est la fréquence d'évolution de  $\rho'_c$  dans le champ  $H_0$ . Nous négligerons la variation de  $\omega$  sur la largeur du croisement de niveaux.

La résolution formelle du système ci-dessus, par élimination de  $\rho'_c$ ,  $\rho'_c^*$  et  $\rho_p$  ne présente pas de difficulté particulière. Nous donnons ici le résultat du calcul. On obtient :

$$\Gamma_b''' (\rho_c + \rho_c^*) = -i (\Omega + \delta) (\rho_c - \rho_c^*) + \mathcal{A}$$

$$\Gamma_b'' (\rho_c - \rho_c^*) = -i (\Omega + \delta) (\rho_c + \rho_c^*) - i\omega \mathcal{B}$$

où  $\Gamma_b'''$  et  $\Gamma_b''$  sont les paramètres dépendant de manière assez compliquée de  $\Gamma_{CN}$ ,  $\Gamma_a$ ,  $\gamma$  et  $\omega$  : la largeur est affectée à la fois par le couplage de  $\rho_c$  avec les populations et de  $\rho_c$  avec  $\rho'_c$ .

en posant  $[C] = ([\Gamma] + \gamma[M])^{-1}$

$$\delta = \Delta\Gamma_3 \left( \Delta\Gamma_3 + 2\gamma^2 [B'] [C] [A] \right) \frac{\omega}{\Gamma_a'^2 + \omega^2}$$

$$\text{où } \Gamma_a'^2 = (\Gamma_a + \Delta\Gamma_2) \left( \Gamma_a + \Delta\Gamma_2 - 2\gamma^2 [B'] [C] [A'] \right)$$

$\mathcal{A}$  est l'analogie du terme N introduit dans (II-55). Son expression est ici compliquée par le couplage de  $\rho_p$  avec  $\rho'_c$ .

$$\mathcal{B} = 2\gamma [B'] [C] [A]$$

En posant  $\Gamma_b'^2 = \Gamma_b'' \cdot \Gamma_b'''$ , il vient

$$\rho_c + \rho_c^* = \frac{\mathcal{A} \Gamma_b''}{\Gamma_b'^2 + (\Omega + \delta)^2} - \omega \frac{\Omega + \delta}{\Gamma_b'^2 + (\Omega + \delta)^2} \mathcal{B}$$

On obtient donc une résonance lorentzienne déplacée de la quantité  $\delta$  : c'est le shift par transitions réelles que nous avons prévu. Il est ici lié uniquement au cycle absorption-émission stimulée (rappelons que nous avons négligé l'effet de l'émission spontanée). Le shift  $\delta$  est une fonction croissante de  $\gamma$  ; remarquons qu'il se compose de deux termes : le premier,  $\Delta\Gamma_3^2$  provient du couplage direct de  $\rho_c$  et  $\rho'_c$  par le laser ; le second provient du couplage de  $\rho_c$  et  $\rho'_c$  par l'intermédiaire des populations.

Le shift varie avec  $\omega$  suivant une forme de dispersion : il passe par un maximum pour  $\omega = \Gamma'_a$  ; ce résultat est encore analogue à celui de C. COHEN-TANNOUJJI [36]

Nous constatons qu'il se superpose de plus à l'absorption une forme de dispersion centrée du même point et d'amplitude proportionnelle à  $\omega$ , qui croît également avec  $\gamma$ .

Du point de vue expérimental, nous avons en général travaillé dans des champs magnétiques tels que  $\omega_I \ll \Gamma'_a$  ; Ceci explique que nous n'ayons pas observé au cours de nos expériences sur les transitions  $J_a = 0 \rightarrow J_b = 1$  de déplacement des croisements de niveaux avec l'intensité du laser ou de dispersion additionnelle variant avec  $\gamma$ .

## Appendice II - Calcul de la cavité du laser à colorant

Nous rappelons ici des résultats développés dans les ref [ 77 ] [ 78 ] et [ 79 ], pour étudier les modifications que l'on peut faire subir à la cavité du laser à colorant que nous avons utilisé (Coherent Radiation 490).

1- Propagation d'un faisceau gaussien

Considérons une onde sphérique ayant une distribution d'amplitude gaussienne sur le front d'onde, se propageant le long de l'axe des z. Elle peut s'écrire :

$$u(x,y,z,t) = \Re (u(x,y) e^{i(\omega t - kz)})$$

avec

$$u(x,y) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{1}{W} \exp \left( -i \frac{\pi}{\lambda} \frac{x^2 + y^2}{R} \right) \exp \left( - \frac{x^2 + y^2}{W^2} \right)$$

où R est le rayon de l'onde sphérique et W le rayon de la tache gaussienne. u(x,y) peut se mettre sous la forme :

$$u(x,y) = \sqrt{\frac{2}{\pi}} \frac{1}{W} \exp \left( -i \frac{\pi}{\lambda} \frac{x^2 + y^2}{\tilde{q}} \right)$$

où l'on définit le rayon de courbure complexe par  $\frac{1}{\tilde{q}} = \frac{1}{R} - i \frac{\lambda}{\pi W^2}$

En utilisant le principe d'Huygens on montre qu'un faisceau ayant une distribution sphérique gaussienne dans un plan d'abscisse  $z_1$  se propage en conservant cette distribution d'onde sphérique gaussienne.

La courbure complexe  $\tilde{q}_2$  dans un plan d'abscisse  $z_2$  est reliée à  $\tilde{q}_1$ , courbure complexe dans le plan  $z_1$  par :

$$\tilde{q}_2 = \tilde{q}_1 + (z_2 - z_1)$$

Soit  $W_0$  le rayon de la tache en un point où l'onde est plane. Le rayon de la tache est alors minimum : c'est un "waist".

Prenons l'origine sur le waist

En un point d'abscisse  $z$ , on a :

$$\frac{1}{q(z)} = \frac{1}{R(z)} - i \frac{\lambda}{\pi W(z)^2} = \frac{1}{z + i \frac{\pi W_0^2}{\lambda}}$$

d'où

$$\begin{cases} R(z) = z + \left( \frac{\pi W_0^2}{\lambda} \right)^2 \frac{1}{z} \\ W(z) = W_0 \sqrt{1 + \left( \frac{\lambda}{\pi W_0^2} \right)^2 z^2} \end{cases}$$

Posons  $z_r = \frac{\pi W_0^2}{\lambda}$ . On vérifie immédiatement que  $z_r$  est la distance du waist à laquelle la dimension de la tache a augmenté de  $\sqrt{2}$  (ou sa surface doublé).  $z_r$  appelé zone de Rayleigh donne un ordre de grandeur de la longueur du waist. Le faisceau, pratiquement parallèle à l'intérieur de cette zone, commence à diverger linéairement avec la distance à l'extérieur.  $R(z)$  et  $W(z)$  s'écrivent:

$$\begin{cases} R(z) = z + \frac{z_r^2}{z} \\ W^2(z) = W_0^2 \left( 1 + \frac{z^2}{z_r^2} \right) \end{cases}$$

Pour le passage à travers des instruments d'optique, on peut généraliser à la courbure complexe les formules habituelles de l'optique géométrique :  
-après passage dans une lentille de distance focale  $f$  on a :

$$\frac{1}{\tilde{q}_2} = \frac{1}{\tilde{q}_1} - \frac{1}{f}$$

-après réflexion sur un miroir sphérique de rayon  $R$ , on a :

$$\frac{1}{\tilde{q}_2} = \frac{1}{\tilde{q}_1} - \frac{2}{R}$$

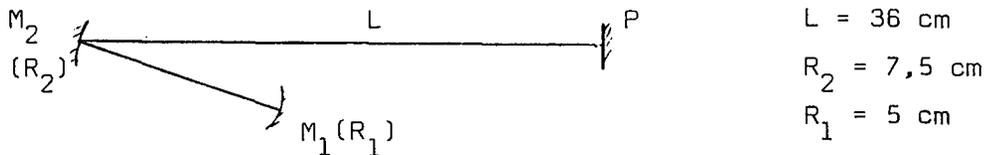
## 2- Etude de la cavité du laser à colorant

A l'intérieur d'une cavité optique formée de deux miroirs, et éventuellement d'autres éléments, on peut montrer que le mode propre d'ordre le

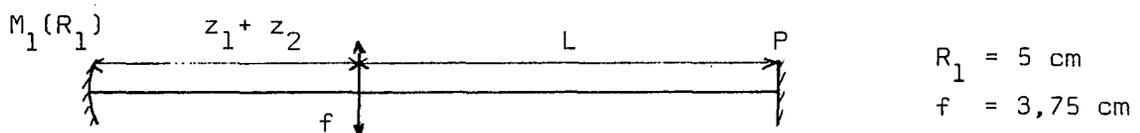
plus bas correspond à une onde gaussienne sphérique. On détermine aisément ses paramètres en écrivant que la courbure de l'onde sur les miroirs doit être égale à la courbure des miroirs. On trouve ainsi des conditions de "stabilité" dans lesquelles il existe un faisceau gaussien propre de la cavité.

Pour abaisser le seuil d'oscillation d'un laser à colorant continu, on a intérêt à augmenter la densité d'énergie lumineuse au niveau du milieu amplificateur, c'est-à-dire à concentrer le faisceau laser en un point. Cette condition n'est compatible avec une longueur de cavité suffisante que si la cavité comporte en plus des miroirs des extrémités un élément optique supplémentaire, lentille ou miroir, destiné à focaliser le faisceau.

La cavité repliée à 3 miroirs a été étudiée par Kogelnik et coll [79]. Nous adaptons ici le traitement donné par ces auteurs à notre problème particulier. Si l'on néglige les effets d'astigmatisme, la cavité à 3 miroirs, représentée ci-dessous



est équivalente à une cavité linéaire à 2 miroirs et une lentille.



Cherchons les conditions de stabilité de cette cavité.

Le faisceau présente un waist entre la lentille et le miroir  $R_1$  (c'est à peu près à cet endroit qu'est placé le jet de colorant). Soient  $z_1$  et  $z_2$  les distances du waist au miroir  $M_1$  et à la lentille. Le rayon de l'onde sur le miroir  $R_1$  doit être égal à  $R_1$  : cette condition s'écrit :

$$R_1 = z_1 + \frac{z_1^2}{z_2} \quad (1)$$

Calculons maintenant la courbure complexe de l'onde à l'abscisse L en fonction de ses paramètres au waist.

Sur le waist, on a

$$\tilde{q}(0) = i z_r$$

Avant le passage dans la lentille

$$\tilde{q}(z_2) = i z_r + z_2$$

Après passage dans la lentille

$$\frac{1}{\tilde{q}'(z_2)} = \frac{1}{\tilde{q}(z_2)} - \frac{1}{f}$$

Finalement, à l'abscisse L

$$\tilde{q}(L) = L + f \frac{z_2 + i z_r}{f - z_2 - i z_r}$$

Le miroir placé en L étant plan, on doit avoir  $\text{Re} \left( \frac{1}{\tilde{q}(L)} \right) = 0$   
d'où l'on déduit la condition de stabilité (2)

$$z_r^2 = - (f - z_2) \left[ (f - z_2) \frac{L}{L - f} + \frac{f z_2}{L - f} \right] \quad (2)$$

La géométrie de la cavité est telle que l'on peut considérer  $L \gg f, z_2$   
L'équation (2) se met alors sous la forme simplifiée

$$z_r^2 = - (f - z_2) \left( f - z_2 + \frac{f z_2}{L} \right) \quad (2')$$

d'où nécessairement

$$0 < z_2 - f < \frac{f z_2}{L} \ll z_2 \quad (3)$$

Finalement (2') peut aussi s'écrire :

$$z_r^2 = (z_2 - f) \left( f - z_2 + \frac{f^2}{L} \right) \quad (2')$$

Supposons que le jet de colorant se trouve au niveau du waist : en l'absence de processus laser, l'image dans la lentille de la tache fluorescente T créée par le laser à Argon de pompe sur le jet de colorant se trouve à la distance d telle que :

$$\frac{1}{d} = \frac{z_2^{-f}}{fz_2}$$

Pour que l'oscillation puisse avoir lieu on doit donc avoir  $d > L$ . L'image de T doit être réelle et située au delà du miroir de sortie.

Remarquons que  $z_r^2$  peut s'écrire :

$$z_r^2 = f^4 \cdot \frac{1}{d} \left( \frac{1}{L} - \frac{1}{d} \right)$$

et que la condition (3') entraîne également  $z_r \ll z_2$

En fait on aligne le laser de la manière suivante : on ajuste les positions des miroirs  $M_1$  et  $M_2$  de manière à faire coïncider les deux images de T données par  $M_2$  et  $M_1 + M_2$ . Donc T se trouve nécessairement au centre du miroir  $M_2$ . Soient  $z_{1T}$  et  $z_{2T}$  les distances de T à  $M_1$  et  $M_2$

$$(z_{1T} + z_{2T} = z_1 + z_2)$$

T ne coïncide pas avec le waist du faisceau, en effet

$$\begin{aligned} z_{1T} &= R_1 \\ \text{et} \quad R_1 &= z_1 + \frac{z_r^2}{z_1} \neq z_1 \end{aligned}$$

mais on peut remarquer que

$$z_{1T} - z_1 = R_1 - z_1 = \frac{z_r^2}{z_1} = z_r \frac{z_r}{z_1} \ll z_r$$

T se trouve donc largement à l'intérieur de la zone de Rayleigh.

Calculons maintenant le rayon  $W_0$  du waist du faisceau.

D'après (2')  $z_r$  - donc  $W_0$  - est maximum pour  $z_2^{-f} = \frac{f^2}{2L}$  ; alors  $z_r = \frac{f^2}{2L}$

La distance  $d$  de l'image de T est alors telle que  $\frac{1}{d} = \frac{z_2^{-f}}{fz_2} \sim \frac{1}{2L}$

donc  $d = 2L$  et le rayon du waist est :  $W_0^2 = \frac{\lambda}{\pi} \frac{f^2}{2L}$

pour  $f = 3,75$  cm,  $L = 36$  cm,  $\lambda = 0,6 \mu$ , on obtient :  $z_r = 0,19$  cm et  $W_0 = 19 \mu$ .

Le diamètre de la tache T produite par le laser à Argon est de l'ordre de  $30$  à  $40 \mu$ , c'est-à-dire sensiblement égal à  $2W_0$ .

Si par contre on se rapproche des limites de stabilité de la cavité,  $W_0$  décroît et tend vers zéro. Les modes d'ordre supérieur qui correspondent à des faisceaux de diamètre supérieur à celui du mode fondamental ont alors un gain important et commencent à osciller, ce qui est défavorable à la stabilité en fréquence du laser.

On a donc intérêt à se placer au voisinage du maximum de  $W_0$ . Cette condition n'est cependant pas très sévère car  $W_0$  passe par un maximum très plat pour  $d=2L$  : à titre d'exemple pour

$$d = 3L \quad W_0 = 17 \mu$$

$$d = \frac{4}{3} L \quad W_0 = 17,5 \mu$$

### 3- Modification de la cavité du laser

Pour les besoins de notre expérience, nous avons dû travailler avec une cavité plus longue que la cavité d'origine. Pour conserver au faisceau la même géométrie, il faut placer à la distance  $L + L'$  du miroir  $M_2$  un miroir dont la courbure est égale à la courbure en ce point de l'onde calculée précédemment.

$$R(L') = L' + \left( \frac{\pi W_L^2}{\lambda} \right)^2 \frac{1}{L'}$$

où  $W_L$  est le rayon du faisceau à l'abscisse  $L$  où l'onde est plane .

$$\tilde{q}(L) = i \frac{\pi W_L^2}{\lambda}$$

A partir de l'expression de  $\tilde{q}(L)$  calculée au paragraphe précédent , on montre facilement que :

$$\left( \frac{\pi W_L^2}{\lambda} \right)^2 = L (d-L)$$

$$d'où R(L') = L' + \frac{L}{L'} (d-L)$$

pour  $L=36$  cm,  $L' = 100$  cm,  $d=2L$  on obtient  $R(L') = 113$  cm. Si , de manière plus réaliste, on choisit  $R(L')$  dans les dimensions standard des constructeurs, on peut calculer  $L$  et  $d$ ; prenons  $d = 2L = 2 \times 36$  cm ,  $R(L') = 100$  cm , on obtient  $L' = 85$  cm et  $W_0 = 21 \mu$  . La dimension du faisceau au niveau du colorant est peu différente de celle que nous avons précédemment.

Remarquons que si l'on avait simplement déplacé le miroir plan de sortie d'origine de  $1m$  , on aurait obtenu , pour  $d=2L$  ,  $W_0 = 9,8 \mu$  , ce qui favorise très nettement les modes d'ordre supérieur et introduit des instabilités de fréquence.

## References

- [ 1 ] J. BROUSSEL et F. BITTER Phys. Rev. 86 308 (1952)
- J. BROUSSEL Thèse Paris (1952)
- [ 2 ] F.O. COLEGROVE , P.A. FRANKEN , R.R. LEWIS et R.A. SANDS Phys. Rev. Lett 3 420 (1959)
- [ 3 ] A. KASTLER J. Phys. Rad. 11 255 (1950)  
A. KASTLER J. Opt. Soc Am. 47 460 (1957)
- [ 4 ] H.W.B. SKINNER et E.T.S. Appleyard Proc. Roy. Soc. A 117 224 (1928)  
J.C. PEBAY-PEYROULA J. Phys. Rad. 20 669 (1959).
- [ 5 ] R.L. FORK , L.E. HARGROVE et M.A. POLLACK Phys. Rev. Lett. 12 705 (1964)  
R.H. CORDOVER, A. SZÖKE et A. JAVAN Bull. Am. Phys. Soc. 9 490 (1964)  
T. HÄNSCH et P. TOSCHEK Phys. Lett. 22 150 (1966)  
B. DECOMPS et M. DUMONT C.R.A.S. 262B 1004 (1966)
- [ 6 ] B. DECOMPS et M. DUMONT J. phys. 29 181 (1968) et 29 443 (1968)  
T. HÄNSCH , R. ODENWALD et P. TOSCHEK Zeit. Phys. 209 478 (1968)
- [ 7 ] T.O. CAROLL et G.J. WOLGA I.E.E.E. Journal of Quantum Electronics 9 456 (1966)  
E. GIACOBINO-FOURNIER C.R.A.S. 276 B 535 (1973)  
R. GUPTA , W. HAPPER , L.K. LAM et S. SVANBERG Phys. Rev. A 8 (1973) 2792
- [ 8 ] J.S. LEVINE , P.A. BONCZYK et A. JAVAN Phys. Rev. Lett . 22 267 (1969)  
S. SVANBERG , P. TSEKERIS et W. HAPPER Phys. Rev. Lett. 30 (1973) 817  
S. SVANBERG et G. BELIN J. Phys B 7 L82 (1974)  
E. GIACOBINO Optics Communications 8 154 (1973) et J. Phys. Lett. 36 L 65 (1975).
- [ 9 ] S. HAROCHE , J.A. PAISNER et A.L. SHAWLOW Phys. Rev. Lett 30 948 (1973)
- [ 10 ] A. CORNEY et G.W. SERIES Proc. Phys. Soc 83 207 (1964)  
J.N. DODD , R.D. KAUL , D.M. WARRINGTON Proc. Phys. Soc. 84 176 1964.  
E.B. ALEXANDROV Opt. Spektrosk . 17 957 (1964)
- [ 11 ] C. BORDE, J.L. HALL dans "Laser spectroscopy" édité par A. Mooradian et R.G. Brewer (Plenum Press N.Y. 1974) p. 125
- [ 12 ] A. JAVAN ds "Quantum Optics and Electronics": Lectures delivered at Les Houches (1964) édité par C. DE WITT, A. BLANDIN et C. COHEN-TANNOUDJI (Gordon and Breach Inc. N.Y. 1965) p. 383

- [ 13] T. HÄNSCH et P. TOSCHEK Z. Physik 236 213 (1970)
- [ 14] B. CAGNAC dans "Laser Spectroscopy" édité par S. HAROCHE ,  
J.C. PEBAY-PEYROULA , T. HÄNSCH et S.E. HARRIS (Springer Verlag 1975)  
p. 165 et ref
- [ 15] SCHÄFFER "Dye Lasers" Spinger Verlag 1973
- [ 16] M. DUCLOY Thèse Paris (1973), Ann. Phys. (1973 -74) p. 403
- [ 17] F. BIRABEN , B. CAGNAC , G. GRYNBERG Phys. Rev. Lett. 32 643 (1974)
- [ 18] S. FENEUILLE , M. KLAPISCH , E. KOENIG et S. LIBERMAN Physica 48 571  
(1970)  
E. KOENIG Phys. Lett. 34 A 284 (1971)
- [ 19] S. LIBERMAN , Thèse Orsay (1971)  
S. LIBERMAN Physica 69 598 (1973)
- [ 20] J.C. HUBBS , C.M. GROSOF Phys. Rev. 104 p. 715 (1956)
- [ 21] J.T. LATOURETTE, NE. QUINN, N.F. RAMSEY Phys. Rev. 107 p. 1202  
(1957)
- [ 22] B.R. JUDD "Operator Techniques in Atomic Spectroscopy"  
(Mac Graw Hill N.Y. 1963) p. 85
- [ 23] G.M. GROSOF , P. BUCK , W. LICHTEN , I.I. RABI Phys. Rev. Lett 1  
p. 214 (1958)
- [ 24] G. RACAH Phys. Rev. 61 p. 537 (1942)
- [ 25] G. RACAH Phys. Rev. 61 186 (1942), 62 ,438 (1942)  
63 367 (1943), 76 1352 (1949)
- [ 26] A. MESSIAH Mécanique Quantique (Dunod Paris 1964) p. 926

- [ 27] I. SOBEL'MAN "An Introduction of the theory of Atomic Spectra" (Pergamon Press 1972) p. 210, 212.
- [ 28] O. REDI et H.H. STROKE Phys. Rev. A2 1135 (1970)
- [ 29] A. LURIO , M. MANDEL et R. NOVICK Phys. Rev. 126 1758 (1962) et Ref.
- [ 30] A. LANDMAN et R. NOVICK Phys. Rev. A 134 56 (1964)
- [ 31] G.K. WOODGATE Proc. Roy. Soc. A293 117 (1966)
- [ 32] B. LAHAYE et J. MARGERIE J. Phys. 36 943 (1975)
- [ 33] P.A. FRANKEN Phys. Rev. 121 508 (1961)
- [ 34] J.P. DESCOUBES Thèse Paris (1967)
- [ 35] C. COHEN-TANNOUDJI et J.P. BARRAT J. Phys. 22 329 (1961) et 22 443 (1961)
- [ 36] C. COHEN-TANNOUDJI Thèse Paris 1962, Ann. Phys. 7 423 (1962)
- [ 37] J.P. FAROUX Thèse Paris (1969)
- [ 38] A. OMONT Thèse Paris (1967)  
A. OMONT J. Phys. 26 26 (1965)
- [ 39] M. DUCLOY Phys. Rev. A8 1844 (1973) et A9 1319 (1974)
- [ 40] C. COHEN-TANNOUDJI dans "Atomic Physics 4" Edité par G. ZU PUTLIZ, E.W. WEBER et A. WINNACKER (Plenum Press N.Y. 1975). p. 589
- [ 41] M. DUMONT et B. DECOMPS J. Phys. 29 181 (1968) et 29 443 (1968)
- [ 42] M. DUMONT Thèse Paris (1971)  
M. DUMONT J. Phys. 33 971 (1972)
- [ 43] B. DECOMPS et M. DUMONT C.R.A.S. 265B 249 (1967)
- [ 44] B. DECOMPS Thèse Paris (1969)
- [ 45] A. ABRAGAM "Les principes du Magnétisme Nucléaire" (P.U.F. Paris 1961) Chap. VIII.

- [ 46] E. BACK Ann. der Phys. 76 317 (1925)
- [ 47] E.H. PINNINGTON J.O.S.A. 57 271 (1967)
- [ 48] P. JACQUINOT C.R.A.S. 202 1578 (1936)
- [ 49] S. HAROCHE Thèse Paris 1971, Ann. Phys. 6 189 (1971)
- [ 50] N. BLOEMBERGEN et Y.R. SHEN Phys. Rev. 133 A37 (1964)
- [ 51] O. NEDELEC Thèse Grenoble (1966)
- [ 52] S. HAROCHE Thèse de 3ème cycle Paris (1967)
- [ 53] F. BLOCH et A. SIEGERT Phys. Rev. 57 522 (1940)
- [ 54] M. DUCLOY Thèse de 3ème cycle Paris (1968)
- [ 55] M. DUCLOY et M. DUMONT J. Phys. 31 419 (1970)
- [ 56] M. DUCLOY , E. GIACOBINO-FOURNIER , B. DECOMPS  
J. Phys. 31 533 (1970)
- [ 57] O. NEDELEC , P. BALTAYAN , A. ORIZET C.R.A.S. 265 542 (1967)
- [ 58] J.N. DODD et G.W. SERIES Proc. Phys. Soc. A263 353 (1961)
- [ 59] F. BIRABEN, B. CAGNAC, G. GRYNBERG J. Phys. 34 845 (1973)
- [ 60] L.S. VASILENKO, V.P. CHEBOTAEV, A.V. SHISHAEV J.E.T.P. Lett  
12 113 (1970)
- [ 61] M. GOPPERT-MAYER Ann. der Phys. 9 273 (1931)
- [ 62] M.D. LEVENSON et N. BLOEMBERGEN Phys. Rev. Lett. 32 (1974) 645  
D. PRITCHARD , J. APT et T.W. DUCAS Phys. Rev. Lett 32 (1974) 641  
T.W. HÄNSCH, K. HARVEY, G. MEISEL et A.L. SHAWLOW Opt. Comm.  
11 50 (1974).
- [ 63] T.W. HÄNSCH , S.A. LEE , R. WALLENSTEIN et C. WIEMAN, Phys. Rev. Lett.  
34 307 (1975).
- [ 64] M.D. LEVENSON, C.D. HARPER et G.L. EESLEY dans "Laser Spectroscopy"  
(Proceedings of the Megeve Conference )Edité par S. HAROCHE,  
J.C. PEBAY-PEYROULA, T.W. HÄNSCH et S.E. HARRIS. (Springer Verlag  
1975) p. 452.

- [ 65] Y. KATO et B.P. STOICHEFF même ref que (64) p. 452
- [ 66] F. BIRABEN, E. GIACOBINO , G. GRYNBERG Phys. Rev. 12 A2444 (1975)
- [ 67] W.K. BISCHEL, P.J. KELLY, C.K. RHODES Phys. Rev. Lett. 34 300 (1975).
- [ 68] G. GRYNBERG Thèse Paris (1976).
- [ 69] W. HEITLER " The Quantum Theory of Radiation" (Oxford 1960)
- [ 70] C. BORDE C.R.A.S. A paraître.
- [ 71] F. BIRABEN, J. BAUCHE, G. GRYNBERG, E. GIACOBINO Phys. Lett. à paraître.
- [ 72] C. LHUILLIER Thèse Paris (1976)
- [ 73] F. BIRABEN Thèse de 3ème cycle Paris (1974)
- [ 74] C.E. MOORE " Atomic Energy Levels" NBS (1971).
- [ 75] R. SALOMAA et S. STENHOLM J. Phys. B 8 1795 (1975)
- [ 76] C. LHUILLIER , E. LUC communication personnelle
- [ 77] H. KOGELNIK et T. LI Appl. Opt. 5 1550 (1966)
- [ 78] A.E. SIEGMAN "An Introduction to lasers and Masers" (Mc' Graw Hill) p. 293
- [ 79] H.W. KOGELNIK , E.P. IPPEN, A. DIENES et C.V. SHANK J. of Quantum Electronics 8 373 (1972)