



HAL
open science

Spectroscopie à deux et trois photons sans élargissement Doppler. Application à l'étude des collisions sodium-Gaz rare

François Biraben

► **To cite this version:**

François Biraben. Spectroscopie à deux et trois photons sans élargissement Doppler. Application à l'étude des collisions sodium-Gaz rare. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1977. Français. NNT: . tel-00011828

HAL Id: tel-00011828

<https://theses.hal.science/tel-00011828>

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

ès Sciences Physiques

présentée

à l'Université Pierre et Marie Curie
- Paris VI -

par François BIRABEN
pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences

Sujet de la thèse :

"SPECTROSCOPIE A DEUX ET TROIS PHOTONS SANS ELARGISSEMENT DOPPLER.
APPLICATION A L'ETUDE DES COLLISIONS SODIUM - GAZ RARE"

soutenue le 20 DECEMBRE 1977

devant le jury composé de :

| | |
|----------------|--------------|
| MM. J. BROSSEL | Président |
| B. CAGNAC |) Examineurs |
| J.P. FAROUX | |
| S. FENEUILLE | |
| C. FLYTZANIS | |
| C. MANUS | |

THESE DE DOCTORAT D'ETAT

ès Sciences Physique

présentée à

l'Université Pierre et Marie Curie

- Paris VI -

par M. François BIRABEN

pour obtenir le grade de DOCTEUR ès SCIENCES

Sujet de la thèse :

"SPECTROSCOPIE A DEUX ET TROIS PHOTONS SANS ELARGISSEMENT
DOPPLER. APPLICATION A L'ETUDE DES COLLISIONS SODIUM - GAZ RARE"

soutenu le 20 DECEMBRE 1977

devant le jury composé de :

| | | |
|--------------|---|------------|
| J. BROSSEL | | Président |
| B. CAGNAC |) | |
| J.P. FAROUX |) | |
| S. FENEUILLE |) | Examineurs |
| C. FLYTZANIS |) | |
| C. MANUS |) | |

Ce travail a été effectué au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure (Halle aux Vins) au cours des années 1975-1977. Je tiens tout d'abord à remercier Messieurs les Professeurs A. Kastler et J. Brosse qui ont bien voulu m'accueillir dans leur laboratoire.

Je tiens à dire toute ma reconnaissance à B. Cagnac ; il m'a proposé ce sujet de thèse si séduisant et a ensuite dirigé l'évolution de celle-ci avec volonté, enthousiasme et gentillesse.

J.P. Faroux a accepté avec une très grande gentillesse de relire et de critiquer la deuxième partie de ce mémoire. Je le remercie vivement pour les nombreuses suggestions et améliorations qu'il m'a proposées et pour l'intérêt qu'il a porté à ce travail.

C'est avec plaisir que je remercie également tous les membres du groupe qui ont participé au développement de la spectroscopie à deux photons. Mademoiselle K. Beroff a réalisé une partie des expériences et des mesures qui sont décrites. Je la remercie vivement pour sa contribution importante à ce travail. J'ai eu la chance de travailler en collaboration avec G. Grynberg et E. Giacobino : leur bonne humeur et leur remarquable intuition des phénomènes physiques m'ont toujours été d'un grand secours. Je tiens à leur exprimer mes très sincères remerciements.

Je remercie également tous les chercheurs du laboratoire pour leurs suggestions et leurs conseils, ainsi que tous les techniciens qui ont participé à la réalisation du montage expérimental. MM. B. Gyors et B. Clergeaud ont ainsi résolu de nombreux problèmes d'électronique. MM. Malet, Quilbeuf et Thommé ont réalisé avec rapidité et sérieux de nombreux supports mécaniques d'une grande précision. Monsieur G. Flory a effectué avec grand soin la fabrication et le remplissage des cellules à sodium. Sans leur aide constante, ce travail n'aurait pu aboutir.

Je remercie également Madame Audouin qui a bien voulu se charger du tirage de ce mémoire ainsi que Madame Robin qui a réalisé les photographies à partir desquelles ont été tirées un certain nombre de figures.

T A B L E D E S M A T I E R E S

INTRODUCTION

| | | |
|-------------------|---|----|
| <u>CHAPITRE I</u> | <u>- PRESENTATION DE LA SPECTROSCOPIE SANS EFFET DOPPLER A DEUX PHOTONS. ETUDE DES FORMES ET DU DEPLACEMENT DES RAIES</u> | 5 |
| I | - Rappel des principales propriétés de l'absorption à deux photons sans effet Doppler | 7 |
| 1° | Principe de la méthode | 7 |
| 2° | Probabilité d'absorption à deux photons | 9 |
| 3° | Propriété de symétrie de l'opérateur $Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$ | 11 |
| 4° | Limitation de la spectroscopie à deux photons sans effet Doppler | 13 |
| II | - Absorption à deux photons dans une onde non monochromatique | 15 |
| 1° | Hypothèses générales du calcul | 15 |
| 2° | Calcul de l'énergie absorbée par l'atome | 15 |
| 3° | Discussion physique | 16 |
| III | - Forme des raies d'absorption à deux photons en absence de collisions | 21 |
| 1° | Description du faisceau laser | 21 |
| 2° | Calcul de l'énergie absorbée par un seul atome | 23 |
| 3° | Energie absorbée par unité de temps par la vapeur atomique | 25 |
| IV | - Effet Stark dynamique | 27 |
| 1° | Calcul des déplacements lumineux | 27 |
| 2° | Ordre de grandeur des déplacements lumineux | 29 |

CHAPITRE II - ASPECT EXPERIMENTAL DES TRANSITIONS A DEUX
PHOTONS DANS LES ATOMES DE SODIUM ET DE NEON 33

| | | | |
|-----|---|--|----|
| I | - | Description de la source de lumière | 37 |
| | | 1°/ Source lumineuse | 37 |
| | | 2°/ Mesure approximative des longueurs d'onde | 41 |
| | | 3°/ Mesure précise des petites variations de fréquence | 42 |
| II | - | Expériences sur l'atome de sodium | 47 |
| | | 1°/ Dispositif expérimental | 47 |
| | | 2°/ Transition à deux photons entre les niveaux 3S et 4D du sodium | 49 |
| | | 3°/ Transition à deux photons entre les niveaux 3S et 5S du sodium | 53 |
| | | 4°/ Etude des largeurs de raies | 55 |
| III | - | Expérience d'absorption à deux photons sur l'atome de néon | 58 |
| | | 1°/ Le couplage de Racah dans l'atome de néon | 58 |
| | | 2°/ Intensités théoriques des transitions à deux photons dans l'atome de néon | 62 |
| | | 3°/ Transition à deux photons vers les niveaux 4d' | 65 |
| | | 4°/ Utilisation d'une cavité résonnante | 69 |
| | | 5°/ Transition à deux photons vers les niveaux $2p^5 4d$ et $2p^5 5s'$ | 71 |
| | | 6°/ Mesure des structures fines des sous configurations $2p^5 4d'$, $2p^5 4d$ et $2p^5 5s'$ | 72 |

CHAPITRE III - TRANSITIONS A TROIS PHOTONS
SANS EFFET DOPPLER 75

| | | | |
|---|---|---|----|
| I | - | Absorption à trois photons sans effet Doppler | 76 |
| | | 1°/ Principe de la spectroscopie sans effet Doppler à trois photons | 76 |
| | | 2°/ Probabilité d'absorption à trois photons | 78 |
| | | 3°/ Calcul d'ordre de grandeur | 81 |

| | | | |
|---|---|--|-----|
| II | - | Présentation de la transition à trois photons entre les états $3S_{1/2}$ et $3P_{1/2}$ du sodium | 85 |
| | | 1°/ Principe de l'expérience | 85 |
| | | 2°/ La transition $3S_{1/2} - 3P_{1/2}$ du sodium | 88 |
| | | 3°/ Évaluation des déplacements lumineux | 90 |
| III | - | Réalisation expérimentale de la transition à trois photons | 92 |
| | | 1°/ Le montage expérimental | 92 |
| | | 2°/ Observation de la transition $3S_{1/2}$ et $3P_{1/2}$ | 95 |
| | | 3°/ Observation des déplacements lumineux | 99 |
| | | 4°/ Effet des collisions | 105 |
| | | | |
| <u>CHAPITRE IV - ELARGISSEMENT ET DEPLACEMENT DES RAIES</u> | | | |
| <u>D'ABSORPTION A DEUX PHOTONS $3S - 4D$ ET</u> | | | |
| <u>$3S - 5S$ PAR COLLISION CONTRE DES ATOMES</u> | | | |
| <u>DE GAZ RARE</u> | | | |
| | | | 109 |
| I | - | Etude théorique des formes de raies | 110 |
| | | 1°/ Effet des changements de vitesse sur les formes des raies | 111 |
| | | 2°/ Le régime d'impact | 114 |
| | | 3°/ Matrice de relaxation ϕ | 116 |
| | | 4°/ Calcul de la fonction de corrélation de l'opérateur transition à deux photons | 117 |
| II | - | Influence d'une <u>petite</u> structure fine ou hyperfine | 121 |
| | | 1°/ Hypothèses physiques | 121 |
| | | 2°/ Expression des coefficients de relaxation | 122 |
| | | 3°/ Elargissement des composantes des raies d'absorption à deux photons | 123 |
| III | - | Etude expérimentale de l'élargissement des transitions $3S - 5S$ et $3S - 4D$ du sodium | 125 |
| | | 1°/ Le banc de pompage et la mesure de pression | 125 |
| | | 2°/ Le montage expérimental | 128 |
| | | 3°/ Résultats expérimentaux | 130 |

CHAPITRE V - ETUDE EXPERIMENTALE DE LA RELAXATION

| | | |
|-----|--|-----|
| | <u>A L'INTERIEUR DU NIVEAU 4D</u> | 147 |
| I | - Coefficients de relaxation du niveau 4D | 150 |
| | 1°/ Relaxation d'un moment cinétique $L = 2$ | 150 |
| | 2°/ Coefficients de relaxation en présence de structure fine | 152 |
| | 3°/ Calcul des coefficients $J_{J,\phi}^K$ | 153 |
| II | - Calcul des intensités et des polarisations des raies de fluorescence | 156 |
| | 1°/ Calcul de la matrice densité stationnaire en négligeant le niveau 4F | 157 |
| | 2°/ Influence du niveau 4F | 159 |
| | 3°/ Expression des intensités de fluorescence en fonction de la matrice densité ρ | 161 |
| | 4°/ Principe des mesures du transfert de population entre les niveaux $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$ | 162 |
| | 5°/ Principe des mesures de relaxation de l'alignement | 164 |
| | 6°/ Principe de la mesure du transfert de l'alignement | 169 |
| | 7°/ Conclusion : déroulement des expériences | 170 |
| III | - Mesure des transferts de population à partir des intensités de fluorescence | 173 |
| | 1°/ Modification du montage expérimental | 173 |
| | 2°/ Transfert vers le niveau 4F | 177 |
| | 3°/ Transfert de population entre les niveaux de structure fine $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$ | 182 |
| IV | - Etude expérimentale de la relaxation de l'alignement à partir des taux de polarisation | 187 |
| | 1°/ Montage expérimental pour la mesure des taux de polarisation | 187 |
| | 2°/ Taux de polarisation en absence de collisions | 190 |
| | 3°/ Etude de la relaxation de l'alignement | 196 |

| | | | |
|--|---|--|---------|
| V | - | Etude de la relaxation de l'alignement par effet Hanle | 203 |
| | | 1°/ Description du montage expérimental | 203 |
| | | 2°/ Résultats obtenus par effet Hanle | 205 |
| VI | - | Calcul des coefficients de relaxation G^k indépendants de la structure fine | 207 |
| <u>CHAPITRE VI - INTERPRETATION THEORIQUE ET CALCUL DES SECTIONS EFFICACES</u> | | | 213 |
| I | - | Hypothèses générales et principe du calcul des sections efficaces | 214 |
| | | 1°/ Approximation des trajectoires rectilignes | 214 |
| | | 2°/ Approximation d'impact et matrice de relaxation | 215 |
| | | 3°/ Propriétés de symétrie de la matrice de relaxation | 216 |
| | | 4°/ Développement du potentiel d'interaction sur la base des états moléculaires | 217 |
| | | 5°/ Calcul de la matrice de collision | 220 |
| II | - | Déplacement et élargissement de la transition 3S - 5S | 223 |
| | | 1°/ Expression des coefficients d'élargissement et de déplacement | 223 |
| | | 2°/ Description qualitative du déplacement et de l'élargissement des transitions | 224 |
| | | 3°/ Calcul de l'élargissement et du déplacement avec un potentiel de Van der Waals | 228 |
| | | 4°/ Utilisation des potentiels de Pascale et Vandeplanque | 231 |
| III | - | Relaxation du niveau 4D | 239 |
| | | 1°/ Calcul des sections efficaces | 239 |
| | | 2°/ Approximations | 243 |
| | | 3°/ Potentiel à longue portée | 248 |
| | | 4°/ Calcul numérique des sections efficaces | 251 |
| | | 5°/ Comparaison avec les mesures du déplacement et de l'élargissement de la transition 3P → 4D | 258 |
| | | 6°/ Calcul de la section efficace de transfert 4D → 4F | 259 |

| | | |
|-------------|---|-----|
| CONCLUSION | | 261 |
| APPENDICE A | - Probabilité d'absorption à deux photons dans le cas d'une onde non monochromatique | 265 |
| APPENDICE B | - Compléments sur le calcul de la forme de raie | 276 |
| APPENDICE C | - Calcul de l'intensité et de la polarisation des raies de fluorescence lors de l'excitation à deux photons entre les niveaux 3S et 4D de l'atome de sodium | 282 |
| APPENDICE D | - Détails sur les potentiels d'interaction | 298 |

I N T R O D U C T I O N

Les performances de la spectroscopie optique ont été longtemps limitées par l'élargissement Doppler dû au mouvement aléatoire des atomes. C'est pourquoi de nombreuses techniques ont été développées pour s'en affranchir. Elles permettent de mesurer la largeur naturelle, le facteur de Landé et les structures fines ou hyperfines des niveaux atomiques et moléculaires lorsque celles-ci sont plus petites que la largeur Doppler. Parmi les méthodes classiques citons l'effet Hanle ⁽¹⁾, les expériences de spectroscopie hertzienne sur les jets atomiques ⁽²⁾, la méthode de double résonance mise au point par Brossel et Bitter ⁽³⁾, la méthode des croisements de niveaux ⁽⁴⁾. *etc*
Ces diverses techniques ont permis d'étudier un grand nombre de niveaux atomiques excités.

L'apparition des lasers a permis de renouveler complètement les techniques expérimentales. D'une part la forte puissance lumineuse délivrée par les lasers permet d'étudier des niveaux qui n'ont pu être excités par une source classique (lampe spectrale, bombardement électronique). Par ailleurs de nouvelles méthodes ont été imaginées pour supprimer l'élargissement Doppler. Celles-ci utilisent soit la très courte durée ^{de pulse} des lasers fonctionnant en impulsion, soit la largeur spectrale très petite des lasers fonctionnant en

régime continu. On peut citer la spectroscopie résolue en temps ⁽⁵⁾, l'excitation d'atomes dans un jet atomique ⁽⁶⁾, l'absorption saturée ⁽⁷⁾, la spectroscopie d'absorption à deux photons sans élargissement Doppler ⁽⁸⁾. Nous décrivons dans ce mémoire quelques applications de cette dernière méthode.

La possibilité qu'a un atome d'absorber deux photons a été prévue théoriquement dès 1931 par M. Goeppert-Mayer ⁽⁹⁾. Expérimentalement les transitions à plusieurs photons ont d'abord été observées dans le domaine des radiofréquences ⁽¹⁰⁾. Dans le domaine optique il a fallu attendre l'apparition des lasers pour les mettre en évidence ⁽¹¹⁾, les puissances lumineuses nécessaires étant très importantes. Plus récemment encore Vasilenko, Chebotayev et Shishaev ⁽⁸⁾ et indépendamment B. Cagnac ont proposé d'éliminer l'élargissement Doppler en étudiant l'absorption à deux photons dans une onde stationnaire.

La première expérience de spectroscopie à deux photons sans élargissement Doppler a été réussie dans notre équipe à la fin de 1973 ⁽¹²⁾. Simultanément deux groupes réalisèrent aux Etats-Unis des expériences analogues à Stanford ⁽¹³⁾ et à Harvard ⁽¹⁴⁾. Ces expériences de démonstration ont été faites dans le cas des transitions à deux photons $3S - 5S$ et $3S - 4D$ de l'atome de sodium, cas très favorables car présentant une forte probabilité d'absorption à deux photons. Ces premières expériences démontrèrent de manière évidente la puissance de la méthode de spectroscopie à deux photons et il s'en est suivi une activité intense dans ce domaine ⁽¹⁵⁾.

Nous présentons dans ce mémoire quelques unes des expériences réussies dans notre groupe au cours de ces dernières années. Ce mémoire comporte six chapitres : les trois premiers sont consacrés à des expériences de spectroscopie multiphotonique proprement dites, les trois derniers décrivent l'application de ces techniques à l'étude des collisions sodium - gaz rare.

- Nous présentons dans le chapitre I le principe de la méthode. Nous rappelons d'abord les principales propriétés des transitions à deux photons, puis nous faisons un calcul de la probabilité d'absorption à deux photons dans le cas où la lumière incidente n'est pas parfaitement monochromatique. Les résultats obtenus nous permettent alors de calculer le profil d'absorption

lorsqu'on tient compte du temps de traversée du faisceau et nous retrouvons ainsi par une méthode légèrement différente le résultat d'un calcul de Bordé (16).

- Le chapitre II est consacré aux techniques expérimentales. Nous décrivons d'abord le laser et les divers asservissements nécessaires pour en contrôler la fréquence. Nous présentons ensuite rapidement les premières expériences faites sur l'atome de sodium (transition $3S - 5S$ et transition $3S - 4D$). Nous décrivons ensuite quelques expériences faites sur l'atome de néon. Dans ce cas le montage expérimental a dû être modifié de manière à augmenter la probabilité d'absorption ; la cellule est placée dans une cavité résonnante et est ainsi soumise à une intensité lumineuse plus forte.
- Nous décrivons dans le chapitre III la première mise en évidence expérimentale de la suppression de l'élargissement Doppler au cours d'une transition à trois photons. Cette expérience a été réalisée dans le cas de la transition $3S_{1/2} \rightarrow 3P_{1/2}$ du sodium.
- Le chapitre IV est consacré à l'étude expérimentale de l'élargissement et du déplacement des transitions à deux photons $3S - 5S$ et $3S - 4D$ de l'atome de sodium en présence de gaz rare. Nous montrons d'abord que, dans ce cas, l'élargissement des raies d'absorption à deux photons doit être lorentzien et que, dans la mesure où les structures fines et hyperfines sont petites devant l'inverse du temps de collision, les diverses composantes des raies d'absorption à deux photons doivent avoir les mêmes élargissement, et déplacement. Ces propriétés sont ensuite vérifiées expérimentalement.
- L'étude expérimentale de la relaxation à l'intérieur du niveau 4D est présentée au chapitre V. Les mesures de transfert de population et d'alignement entre les deux niveaux de structure fine $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$ sont interprétées dans l'approximation où la structure fine est très petite devant l'inverse du temps de collision. Nous pouvons ainsi connaître les sections efficaces de relaxation de la population, de l'orientation, de l'alignement et du multipole d'ordre trois relatives à l'atome sans structure fine.

- Nous présentons enfin dans le chapitre VI quelques calculs théoriques des sections efficaces. Les deux principales approximations sont les suivantes : approximation semi-classique et trajectoire rectiligne, structures fines et hyperfines petites devant l'inverse du temps de collision. Ces calculs sont faits soit en utilisant le développement du potentiel interatomique en puissance de $1/R$, soit en utilisant les potentiels sodium - gaz rare calculés par Pascale et Vandepianque ⁽¹⁷⁾.

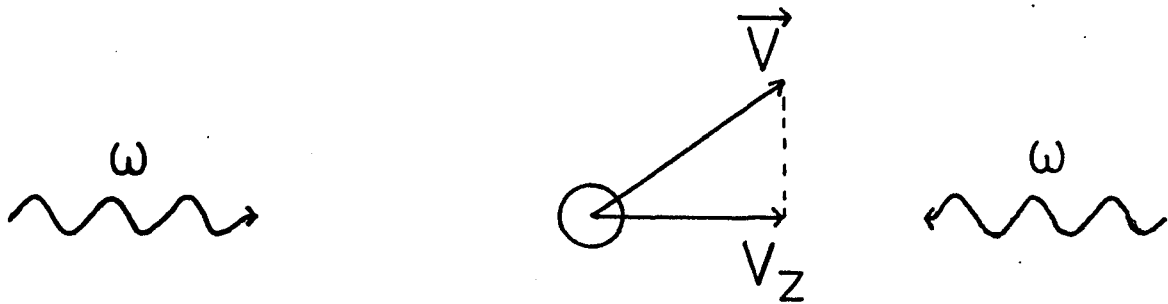
C H A P I T R E I

PRESENTATION DE LA SPECTROSCOPIE SANS EFFET DOPPLER A DEUX PHOTONS

ETUDE DES FORMES ET DU DEPLACEMENT DES RAIES

Les principales propriétés des transitions à deux photons sans effet Doppler ont déjà été étudiées en détail par G. GRYNBERG ⁽¹⁾. C'est pourquoi nous avons mis l'accent dans ce chapitre de présentation sur deux points qu'il n'a pas abordés. Nous allons d'abord étudier l'absorption à deux photons lorsqu'on n'est plus en régime stationnaire, c'est-à-dire lorsqu'on tient compte de la dépendance temporelle de l'intensité de la lumière incidente. Cette étude est intéressante car elle montre comment l'on peut calculer facilement les phénomènes transitoires dans le cas de l'absorption à deux photons. Expérimentalement la mise en évidence de ces transitoires a été faite au laboratoire par M. BASSINI ⁽¹⁵⁾ et il était utile de comprendre les différences entre les transitoires à un photon et ceux à deux photons. Le deuxième point particulier que nous avons examiné est le calcul exact de la forme de raie d'absorption à deux photons lorsqu'on tient compte de l'élargissement dû au temps de traversée du faisceau.

Le plan de ce chapitre va être le suivant. Nous commençons par rappeler rapidement le principe et les principales propriétés de la spectroscopie à deux photons sans effet Doppler. Nous présentons ensuite dans une



Référentiel du laboratoire

$$\omega_2 = \omega \left(1 - \frac{V_z}{c}\right)$$



$$\omega_1 = \omega \left(1 + \frac{V_z}{c}\right)$$



Référentiel de l'atome

Equation de conservation de l'énergie

$$\omega_e - \omega_g = \omega \left(1 + \frac{V_z}{c}\right) + \omega \left(1 - \frac{V_z}{c}\right) = 2\omega$$

Figure I_1

deuxième partie un calcul dépendant du temps de la probabilité de transition à deux photons. Nous appliquons alors les résultats obtenus pour calculer en détail l'élargissement dû au temps de traversée du faisceau. Enfin nous étudions dans une dernière partie les déplacements des raies dus à l'effet Stark dynamique ("light-shift").

I - RAPPEL DES PRINCIPALES PROPRIETES DE L'ABSORPTION A DEUX PHOTONS SANS EFFET DOPPLER

La possibilité d'utiliser l'absorption à deux photons comme méthode de spectroscopie à haute résolution n'est apparue que très récemment. En 1970 L.S. VASILENKO, V.P. CHEBOTAIEV et A.V. SHISHAEV ⁽²⁾ et indépendamment en 1971 B. CAGNAC ⁽³⁾ ont montré que l'absorption à deux photons dans une onde stationnaire permettait d'éliminer l'effet Doppler. Nous allons d'abord présenter le principe de cette méthode.

1°/ Principe de la méthode

Considérons un atome placé dans une onde stationnaire de fréquence ω . Dans son référentiel propre l'atome voit deux ondes de fréquence ω_1 et ω_2 se propageant en sens contraire (figure I-1). Si V_z est la composante de la vitesse de l'atome le long de la direction de propagation de ces deux ondes, nous avons :

$$\omega_1 = \omega \left(1 + \frac{V_z}{c} \right) \qquad \omega_2 = \omega \left(1 - \frac{V_z}{c} \right) \qquad (I-1)$$

Supposons que l'atome absorbe deux photons ~~pour~~ pour transiter d'un état d'énergie $\hbar\omega_g$ vers un état d'énergie $\hbar\omega_e$. L'équation de conservation de l'énergie s'écrit :

$$\hbar\omega_e - \hbar\omega_g = \hbar\omega \left(1 + \frac{V_z}{c} \right) + \hbar\omega \left(1 - \frac{V_z}{c} \right) = 2 \hbar\omega \qquad (I-2)$$

Il est remarquable de constater que cette condition est indépendante de la vitesse de l'atome. Tous les atomes, quel que soit leur vitesse, absorbent deux photons pour la même fréquence ω . Le profil d'absorption est donc une courbe très étroite dont la largeur est théoriquement la largeur naturelle.

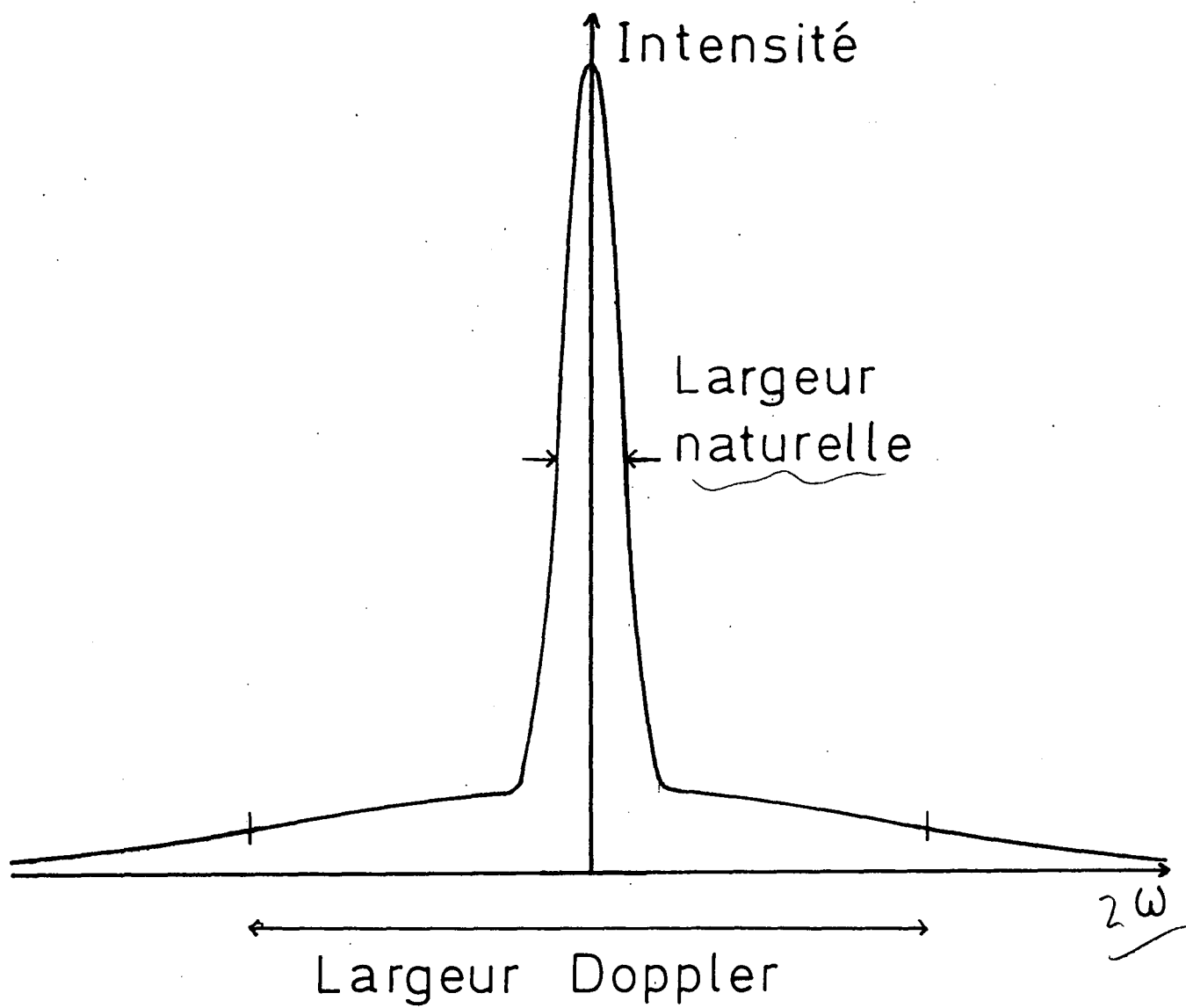


Figure 1_2

En fait, l'atome peut aussi absorber deux photons de fréquence ω_1 ou deux photons de fréquence ω_2 . L'équation de conservation de l'énergie s'écrit alors :

$$\hbar\omega_e - \hbar\omega_g = 2 \hbar\omega \left(1 + \frac{v}{c} \frac{z}{c}\right) \quad (I-3)$$

ou :
$$\hbar\omega_e - \hbar\omega_g = 2 \hbar\omega \left(1 - \frac{v}{c} \frac{z}{c}\right)$$

Ces conditions dépendent de la vitesse de l'atome : le profil d'absorption correspondant est élargi par effet Doppler. La courbe d'absorption est donc la superposition d'une courbe large de faible amplitude ayant la largeur Doppler et d'une courbe fine de grande amplitude ayant la largeur naturelle (figure I-2).

2°/ Probabilité d'absorption à deux photons

L'étude théorique de l'absorption à deux photons a été faite dès 1931 par M. GOEPPERT-MAYER (4). Nous allons simplement donner ici l'expression de la probabilité de transition à deux photons. Ces résultats sont démontrés en détail dans la thèse de GRYNBERG (1) ou bien dans la référence (5).

On considère un atome placé dans une onde stationnaire parfaitement monochromatique de fréquence ω . La probabilité par unité de temps Γ_g pour que l'atome transite du niveau g vers le niveau e s'écrit :

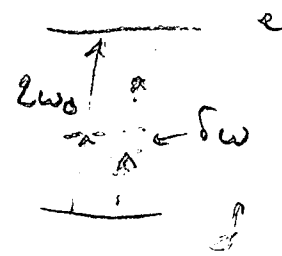
$$\Gamma_g = \frac{n_1 n_2 \omega^2}{\epsilon_0^2} \left| \langle e | Q \frac{S}{\epsilon_1 \epsilon_2} | g \rangle \right|^2 \frac{\Gamma_e}{4\delta\omega^2 + \frac{1}{4} \Gamma_e^2} \quad (I-4)$$

Prof adrien
D 1 20

où :
$$Q \frac{S}{\epsilon_1 \epsilon_2} = \frac{1}{2} \sum_r \left(\vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_1 \frac{|r\rangle\langle r|}{\hbar\Delta\omega_r} \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_2 + \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_2 \frac{|r\rangle\langle r|}{\hbar\Delta\omega_r} \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_1 \right) \quad (I-5)$$

Les notations sont les suivantes : n_1 et n_2 sont le nombre de photons par unité de volume de chacun des faisceaux et $\vec{\epsilon}_1$ et $\vec{\epsilon}_2$ leurs polarisations respectives ; Γ_e est l'inverse de la durée de vie de l'état excité et $\delta\omega$ l'écart à résonance :

$$\delta\omega = \omega - \frac{1}{2} (\omega_e - \omega_g) \quad (I-6)$$



Nous n'avons considéré ici que l'absorption sans effet Doppler en négligeant la possibilité qu'a l'atome d'absorber deux photons se propageant dans le même sens.

La signification physique de l'opérateur "transition à deux photons" $Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$ est simple. L'atome absorbe d'abord un photon qui lui permet de passer de l'état g à un état intermédiaire r que nous appelons niveau relai. Comme il n'y a pas conservation de l'énergie, il ne peut y rester que le temps $\frac{1}{\Delta\omega_r}$ où $h\Delta\omega_r$ représente le défaut d'énergie (figure I-3) :

$$\Delta\omega_r = \omega_r - \omega_g - \omega \quad (I-7)$$

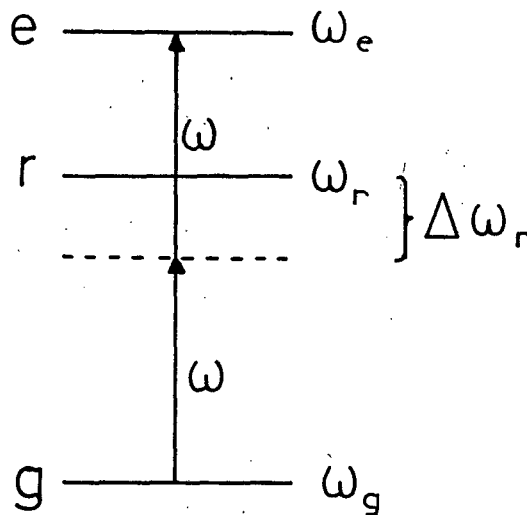


Figure I-3

L'atome absorbe alors un second photon qui lui permet de passer de l'état relai r à l'état excité e . Il y a conservation de l'énergie pour le processus global. La somme sur les niveaux relais r signifie que l'atome peut utiliser tous les chemins possibles. Nous voyons cependant que la probabilité de transition est d'autant plus grande que le défaut d'énergie $\Delta\omega_r$ est petit. Si un niveau relai r (ou un groupe de niveau) est presque résonnant à un photon il a une influence prépondérante et on peut alors négliger les autres niveaux dans la somme sur les niveaux relais.

L'opérateur $Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$ est la somme de deux termes car l'atome peut absorber soit un photon de l'onde 1, puis un photon de l'onde 2, ou bien l'inverse. Le formule (I-4) indique d'autre part que le profil de la raie sans effet Doppler est une lorentzienne de largeur Γ_e (nous raisonnons sur deux fois la fréquence lumineuse) centrée sur la fréquence atomique ω_{eg} ($\omega_{eg} = \omega_e - \omega_g$).

Précisons enfin les conditions de validité des expressions (I-4) et (I-5) :

- les transitions \sqrt{v} à un photon sont ~~interdites~~, c'est-à-dire que : $\Delta\omega_r \gg \Gamma_r$ et $\Delta\omega_r \gg kv_z$ (Γ_r est la durée de vie de l'état relais r) ;
- les puissances lumineuses sont assez faibles de manière à ne pas saturer la transition à deux photons : $\Gamma_g \ll \Gamma_e$
- l'effet Doppler du second ordre est négligeable : $v \ll c$
- l'atome a une vitesse suffisante pour ne pas coupler par effet Raman les deux faisceaux, c'est-à-dire : $kv_z > \Gamma_e$. Dans la mesure où la largeur Doppler est grande devant la largeur naturelle on peut négliger les atomes de vitesses nulles.

3°/ Propriété de symétrie de l'opérateur $Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$

Réécrivons l'opérateur $Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$ en faisant apparaître l'hamiltonien atomique H_0 (pour simplifier nous choisissons comme zéro d'énergie l'énergie de l'état fondamental $\hbar\omega_g$) :

$$Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S = \frac{1}{2} \left[\vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_2 \frac{1}{H_0 - \hbar\omega} \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_1 + \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_1 \frac{1}{H_0 - \hbar\omega} \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_2 \right] \quad (I-8)$$

L'opérateur $[H_0 - \hbar\omega]^{-1}$ étant un opérateur scalaire et l'opérateur \vec{D} étant un opérateur vectoriel, l'opérateur $Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$ se décompose uniquement sur des opérateurs tensoriels de rang 0, 1 ou 2. D'autre part les opérateurs $Q_{\epsilon_i \epsilon_j}^S$ forment un ensemble d'opérateurs symétriques par échange des polarisations : ils se décomposent uniquement sur des opérateurs de rang pairs. L'opérateur $Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$ est donc la somme d'un opérateur de rang 0 et d'un opérateur de rang 2.

Remarquons que la symétrie des opérateurs $Q_{\epsilon_i \epsilon_j}^S$ tient au fait que les deux photons absorbés ont la même fréquence.

Explicitons le développement de l'opérateur $Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$. Nous introduisons pour cela les opérateurs tensoriels Q_q^k définis par :

$$Q_q^k = \sum_{q_1 q_2} \langle kq \mid 11q_1 q_2 \rangle D_{q_1} \frac{1}{H_0 - \hbar\omega} D_{q_2} \quad (\text{I-9})$$

D_q étant une composante standard de \vec{D} . L'opérateur transition à deux photons s'écrit alors :

$$Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S = a_o^0 Q_o^0 + \sum_q a_q^2 Q_q^2 \quad (\text{I-10})$$

Le calcul des coefficients a_q^k a été effectué en détail par GRYNBERG (1). Ils ne dépendent que des polarisations ϵ_1 et ϵ_2 . Nous les donnons dans le tableau I lorsque les polarisations excitatrices sont choisies parmi les trois polarisations standard σ^+ , σ^- , Π .

| Onde 1 \ Ondes 2 | σ^- $q_1 = -1$ | Π $q_1 = 0$ | σ^+ $q_1 = +1$ |
|--------------------------|---|--|---|
| σ^- $q_2 = -1$ | $a_q^2 = \delta_{q,-2}$ $a_o^0 = 0$ | $a_q^2 = \delta_{q,-1} \sqrt{\frac{1}{2}}$ $a_o^0 = 0$ | $a_q^2 = \delta_{q,0} \sqrt{\frac{1}{6}}$ $a_o^0 = \frac{1}{\sqrt{3}}$ |
| Π $q_2 = 0$ | $a_q^2 = \delta_{q,-1} \sqrt{\frac{1}{2}}$ $a_o^0 = 0$ | $a_q^2 = \delta_{q,0} \sqrt{\frac{2}{3}}$ $a_o^0 = -\frac{1}{\sqrt{3}}$ | $a_q^2 = \delta_{q,1} \sqrt{\frac{1}{2}}$ $a_o^0 = 0$ |
| σ^+ $q_2 = +1$ | $a_q^2 = \delta_{q,0} \sqrt{\frac{1}{6}}$ $a_o^0 = \frac{1}{\sqrt{3}}$ | $a_q^2 = \delta_{q,1} \sqrt{\frac{1}{2}}$ $a_o^0 = 0$ | $a_q^2 = \delta_{q,2}$ $a_o^0 = 0$ |

Tableau I

Dans la pratique on s'intéresse aux éléments de matrice de $Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$ entre un état α de moment cinétique J_α et un état β de moment cinétique J_β . Il suffit alors de considérer uniquement la restriction de l'opérateur

$Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$ aux sous-espaces vectoriels engendrés par les états α et les états β :

$$\alpha\beta Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S = P_\alpha Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S P_\beta$$

P_α et P_β sont les projecteurs sur les états αJ_α et βJ_β . Dans de nombreux cas l'opérateur $\alpha\beta Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$ est de rang bien défini :

- $J_\alpha \neq J_\beta$: $\alpha\beta Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$ est purement quadripolaire
- $J_\alpha = J_\beta < \frac{1}{2}$ $\alpha\beta Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$ est un opérateur scalaire.

Donnons enfin la décomposition de l'opérateur $\alpha\beta Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$ sur la base des opérateurs tensoriels irréductibles. Une telle décomposition fait clairement apparaître les propriétés angulaires de l'opérateur transition à deux photons. Les opérateurs tensoriels irréductibles $J_\alpha J_\beta T_q^k$ sont définis par (6) :

$$J_\alpha J_\beta T_q^k = \sum_{m_\alpha m_\beta} (-1)^{J_\beta - m_\beta} \langle J_\alpha J_\beta m_\alpha - m_\beta | kq \rangle | \alpha J_\alpha m_\alpha \rangle \langle \beta J_\beta m_\beta | \quad (\text{I-12})$$

La décomposition de $\alpha\beta Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S$ s'écrit alors :

$$\alpha\beta Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S = \sum_{k=0,2} \frac{\langle \alpha J_\alpha || Q^k || \beta J_\beta \rangle}{\sqrt{2k+1}} \sum_q a_q^k J_\alpha J_\beta T_q^k \quad (\text{I-13})$$

4°/ Limitation de la spectroscopie à deux photons sans effet Doppler

Nous allons examiner ici les diverses causes de déplacement et d'élargissement des courbes d'absorption à deux photons.

a) Effet Doppler du second ordre

Si l'on tient compte du premier terme d'ordre supérieur de la mécanique relativiste la condition de résonance s'écrit :

$$h\omega_e - h\omega_g = \frac{2 h\omega}{\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}}$$

Le centre de la raie d'absorption à deux photons est alors déplacé et son profil est rendu disymétrique. Cependant cet effet est faible dans les expériences que nous avons réalisées. Aux énergies thermiques on a en effet $\frac{v^2}{c^2} \approx 10^{-11}$, ce qui correspond à une correction de l'ordre de 5 kHz pour une fréquence optique. La largeur naturelle des niveaux que nous avons étudiés étant de l'ordre de quelques MHz, on peut donc négliger l'effet Doppler du second ordre.

b) Temps de traversée du faisceau

Expérimentalement nous utilisons comme source lumineuse des faisceaux lasers que nous focalisons sur un diamètre de l'ordre de 50μ environ. Si l'atome met le temps τ pour traverser le faisceau laser, il voit une onde de largeur spectrale $\frac{1}{\tau}$. Cet effet n'est pas négligeable dans nos expériences et c'est pourquoi nous allons l'étudier en détail dans la troisième partie de ce chapitre.

c) Effet des collisions

Dans les cellules d'expérience les atomes observés peuvent subir des collisions entre eux ou bien contre un gaz étranger : les transitions à deux photons sont alors déplacées et élargies. L'étude détaillée de cet effet sera faite au chapitre IV.

d) Effet Stark dynamique

Pour obtenir une probabilité de transition appréciable, il est nécessaire de soumettre les atomes à des champs électromagnétiques intenses. L'effet Stark dynamique peut alors ne plus être négligeable. Nous l'évaluerons dans la dernière partie de ce chapitre.

II - ABSORPTION A DEUX PHOTONS DANS UNE ONDE NON MONOCHROMATIQUE

Dans cette partie nous calculons la probabilité d'absorption à deux photons lorsque l'atome est soumis à une onde non monochromatique. Les résultats obtenus nous seront utiles pour étudier en détail le profil des courbes d'absorption à deux photons.

1°/ Hypothèses générales du calcul

Nous nous plaçons dans le référentiel de l'atome. L'atome est soumis à un champ électrique $E(t)$ de polarisation ϵ . Nous supposons que l'atome est irradié pendant un intervalle de temps ΔT en dehors duquel on peut considérer que le champ $E(t)$ est nul. Cette hypothèse est généralement vérifiée. En particulier c'est le cas d'un atome de vitesse v qui traverse un faisceau laser. Pour simplifier nous allons nous limiter au cas d'une polarisation linéaire.

Soit $\mathcal{E}(\omega)$ la transformée de Fourier de $E(t)$:

$$E(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \mathcal{E}(\omega) e^{-i\omega t} \quad (\text{I-15})$$

$\mathcal{E}(\omega)$ est une fonction centrée en ω_L de largeur $\Delta\omega_L$.

Initialement l'atome est dans un état $|g\rangle$, état propre de l'hamiltonien atomique H_0 . L'énergie de cet état est prise comme zéro d'énergie. Nous supposons enfin que les transitions à un photon sont interdites. Pour tous les niveaux atomiques (d'énergie $\hbar\omega_a$ et de largeur $\hbar\Gamma_a$), nous avons :

$$\Delta\omega_L \ll |\omega_a - \omega_L| \quad \Gamma_a \ll |\omega_a - \omega_L| \quad (\text{I-16})$$

2°/ Calcul de l'énergie absorbée par l'atome

Les étapes du calcul sont les suivantes :

- l'état du système $|\psi(t)\rangle$ à l'instant t est obtenu par un calcul de perturbation au second ordre ;

- on calcule ensuite le dipole induit : $D(t) = \langle \psi(t) | D | \psi(t) \rangle$;
- l'énergie totale W absorbée par l'atome entre $t = -\infty$ et $t = +\infty$ s'obtient en calculant le travail du champ électrique sur le dipole induit :

$$W = \int_{-\infty}^{+\infty} dt E(t) \cdot \frac{d}{dt} [D(t)] \quad (I-17)$$

Remarquons tout de suite que W ne peut être défini ainsi que dans l'hypothèse où le champ électromagnétique vu par l'atome ne dure qu'un temps fini ΔT . Dans le cas contraire l'énergie absorbée par l'atome peut être infinie et l'énergie W n'est donc plus définie.

Les détails du calcul de W ont été donnés dans l'appendice A. Dans ce calcul nous introduisons l'opérateur $\hat{Q}_{\epsilon\epsilon}^S(t)$ qui représente l'opérateur transition à deux photons en représentation d'interaction. Nous obtenons finalement :

$$W = \frac{4\pi\omega_L}{\hbar} \text{Réal} \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega |A(\Omega)|^2 \int_0^{+\infty} d\tau e^{+i\Omega\tau} \langle g | \hat{Q}_{\epsilon\epsilon}^S(0) \hat{Q}_{\epsilon\epsilon}^{S+}(\tau) | g \rangle \quad (I-18)$$

La quantité $A(\Omega)$ ne dépend que du champ électromagnétique. Elle est définie par :

$$A(\Omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathcal{E}(\omega) \mathcal{E}(\Omega - \omega) d\omega \quad (I-19)$$

En utilisant la définition de $\mathcal{E}(\omega)$ (expression I-15) on peut encore écrire :

$$A(\Omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E(t)^2 e^{i\Omega t} dt \quad (I-20)$$

3°/ Discussion physique

Il est intéressant de comparer le résultat obtenu au cas de l'absorption à un photon. On a alors :

$$W \sim \text{Réal} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega |\mathcal{E}(\omega)|^2 \int_0^{\infty} d\tau e^{i\omega\tau} \langle g | \hat{D}(0) \hat{D}^+(\tau) | g \rangle \quad (I-21)$$

$$\mathcal{E}(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E(t) e^{i\omega t} dt \quad (I-22)$$

Dans le cas des transitions à un photon l'énergie absorbée dépend de la fonction de corrélation de l'opérateur dipolaire électrique (formule I-21). Nous voyons que pour les transitions à deux photons l'énergie absorbée dépend de manière analogue de la fonction de corrélation de l'opérateur transition à deux photons. La comparaison des expressions (I-18) et (I-20) aux expressions (I-21) et (I-22) nous montre donc que le calcul de la probabilité de transition à deux photons est analogue à celui de la probabilité de transition à un photon. Il suffit de remplacer le dipole électrique par l'opérateur transition à deux photons et le champ électrique $E(t)$ par son carré $E^2(t)$. Cette remarque permet en particulier de calculer les phénomènes transitoires à deux photons comme s'il s'agissait de transitions à un photon, ce qui simplifie notablement les calculs.

Dans le cas simple où, en absence de champ électromagnétique, l'atome est isolé, le calcul de cette fonction de corrélation a été donné dans l'appendice A. Si la fréquence moyenne ω_L du champ électrique permet d'absorber deux photons à partir d'un état fondamental g vers un niveau excité e de largeur Γ_e , nous avons :

$$W = \frac{4\pi\omega_L}{\hbar} |\langle g | Q_{eE}^S | e \rangle|^2 \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega |A(\Omega)|^2 \frac{\Gamma_e}{(\Omega - \omega_{eg})^2 + \frac{1}{4} \Gamma_e^2} \quad (I-23)$$

Nous étudierons dans le chapitre IV le cas plus complexe où les atomes interagissent sous l'effet des collisions.

Les propriétés du champ électromagnétique apparaissent dans l'expression (I-18) au moyen de $A(\Omega)$ qui est la transformée de Fourier du carré du champ électrique vu par l'atome. Il est remarquable que $A(\Omega)$ dépende de $E(t)^2$ et non d'un produit du type $E(t_1) E(t_2)$. Ceci est dû au fait que l'atome ne peut rester dans l'état relai que le temps $\frac{1}{\Delta\omega_r}$ qui est très court par rapport aux autres temps d'évolution atomiques. Dans ces conditions l'absorption des deux photons se fait simultanément et la probabilité de transition ne dépend que de la valeur du champ électrique au seul instant t . Ceci n'est vrai que dans la mesure où les transitions à un photon sont interdites. En particulier le défaut d'énergie $\Delta\omega_r$ doit être très grand par rapport à la largeur spectrale de l'excitation $\Delta\omega_L$. Ceci signifie que le temps d'absorption de deux photons $\frac{1}{\Delta\omega_r}$ est très petit par rapport au temps d'évolution du champ électrique $\frac{1}{\Delta\omega_L}$.

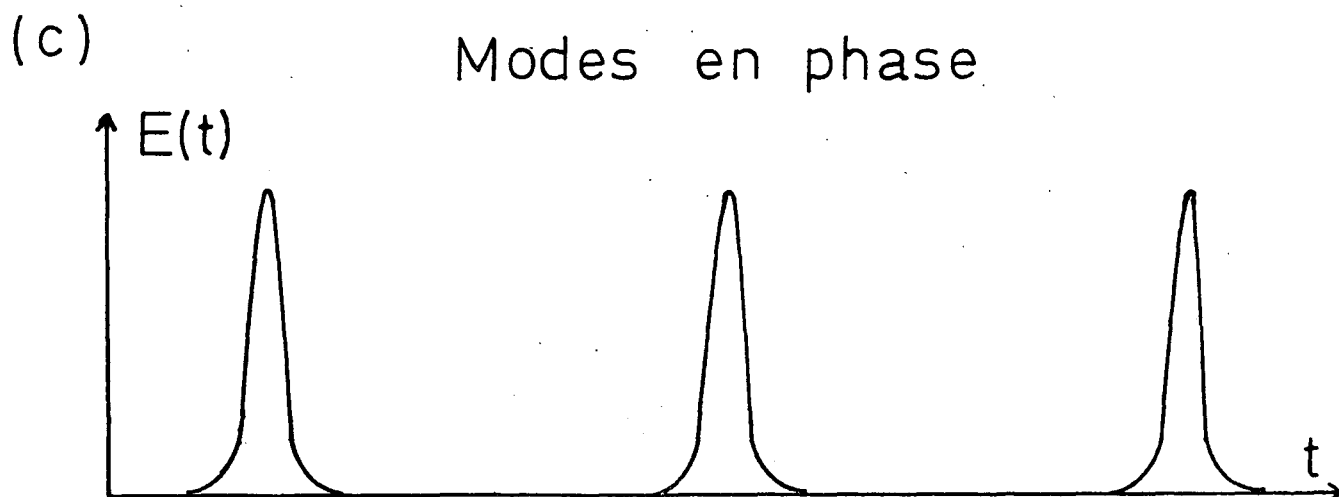
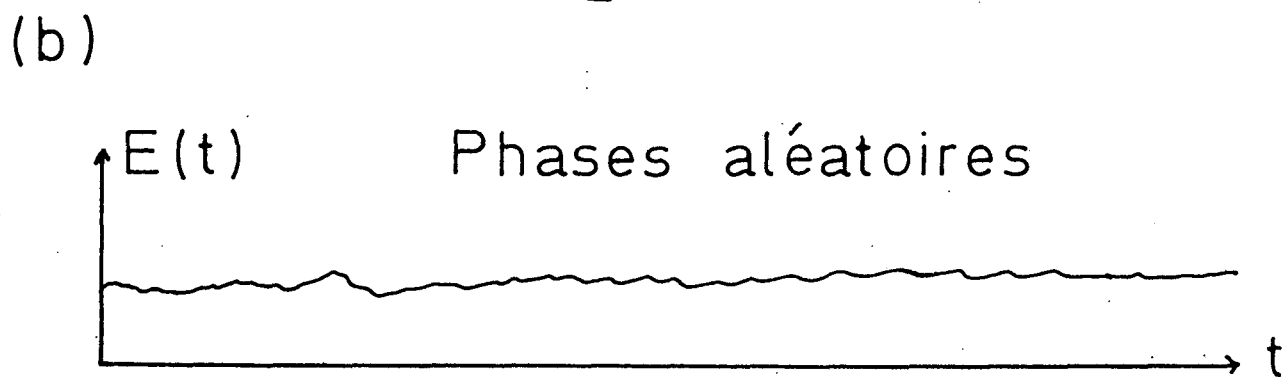
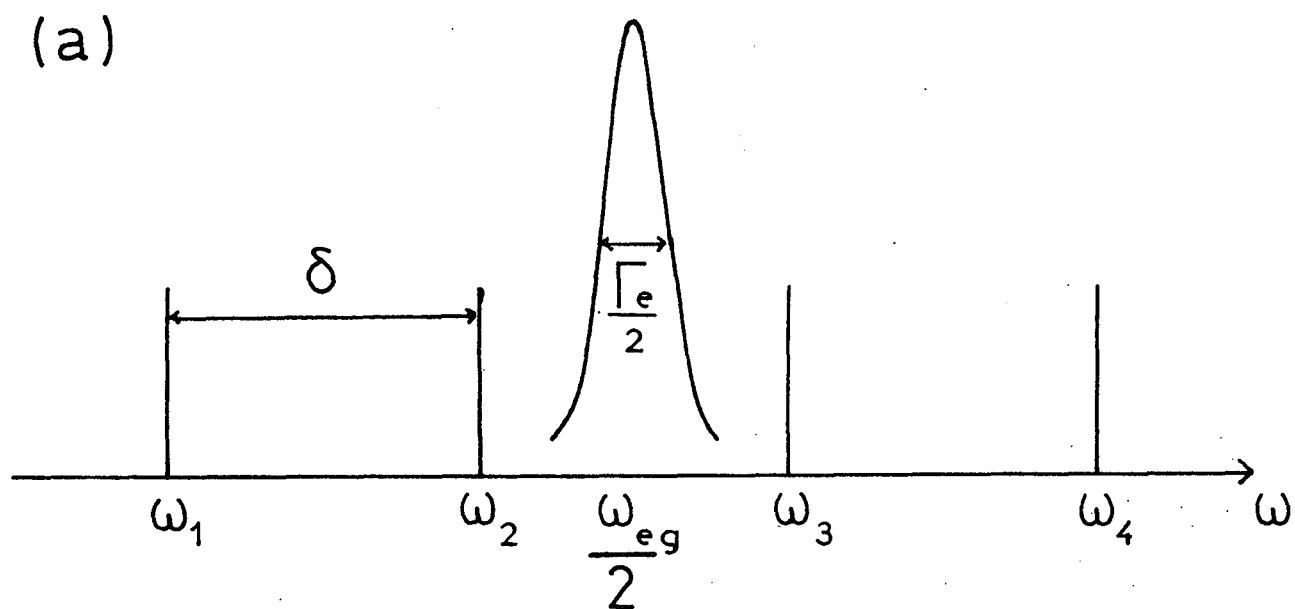


Figure I -4

La fonction $A(\Omega)$ fait intervenir les phases relatives des divers modes du champ électromagnétique. Un exemple simple permet d'illustrer cette dépendance. Nous supposons que le champ électromagnétique est la superposition de $2N$ modes parfaitement monochromatiques de fréquences ω_n équidistants. Nous calculons la puissance absorbée lorsque ces modes sont placés de manière symétriques par rapport à la résonance. Nous supposons de plus que la distance δ entre deux modes est grande devant la largeur naturelle Γ_e (figure I-4a).

Il y a résonance lorsque l'atome absorbe un photon dans chacun des deux modes situés symétriquement par rapport à $\frac{\omega_{eg}}{2}$. Dans ces conditions $A(\Omega)$ est nul si Ω est différent de ω_{eg} . Nous adaptons le calcul précédent en remplaçant les intégrales par des sommes discrètes. La puissance absorbée est alors proportionnelle à :

$$A = \left| \sum_{n=1}^{2N} E_n E_{2N-n} \right|^2 = 4 \left| \sum_{n=1}^N E_n E_{2N-n} \right|^2 \quad (\text{I-24})$$

La phase de chacun des termes de la somme peut être choisie de manière arbitraire. Si les phases relatives sont aléatoires, nous avons :

$$A = 4 \sum_{n=1}^N |E_n E_{2N-n}|^2 = 4 N E^4 \quad (|E_n| = E) \quad (\text{I-25})$$

Par contre, si tous les termes ont la même phase ("mode locking"), il y a interférence constructive :

$$A = 4 |N E^2|^2 = 4 N^2 E^4$$

Le résultat obtenu est donc différent d'un facteur N . La signification physique de ce facteur est simple. Lorsque les phases relatives des modes sont aléatoires le champ électrique est à peu près constant. Par contre lorsque tous les modes ont la même phase, le champ $E(t)$ est nul la plupart du temps et très intense pendant de courts instants (figure I-4 b, c). L'absorption à deux photons étant un phénomène non linéaire, le signal est plus important lorsque la lumière arrive en impulsion plutôt que de manière continue.

Ce genre d'effet est bien connu en optique non linéaire. Il a été mis en évidence expérimentalement dans le cas de l'absorption à deux photons (7)

Faisceau gaussien

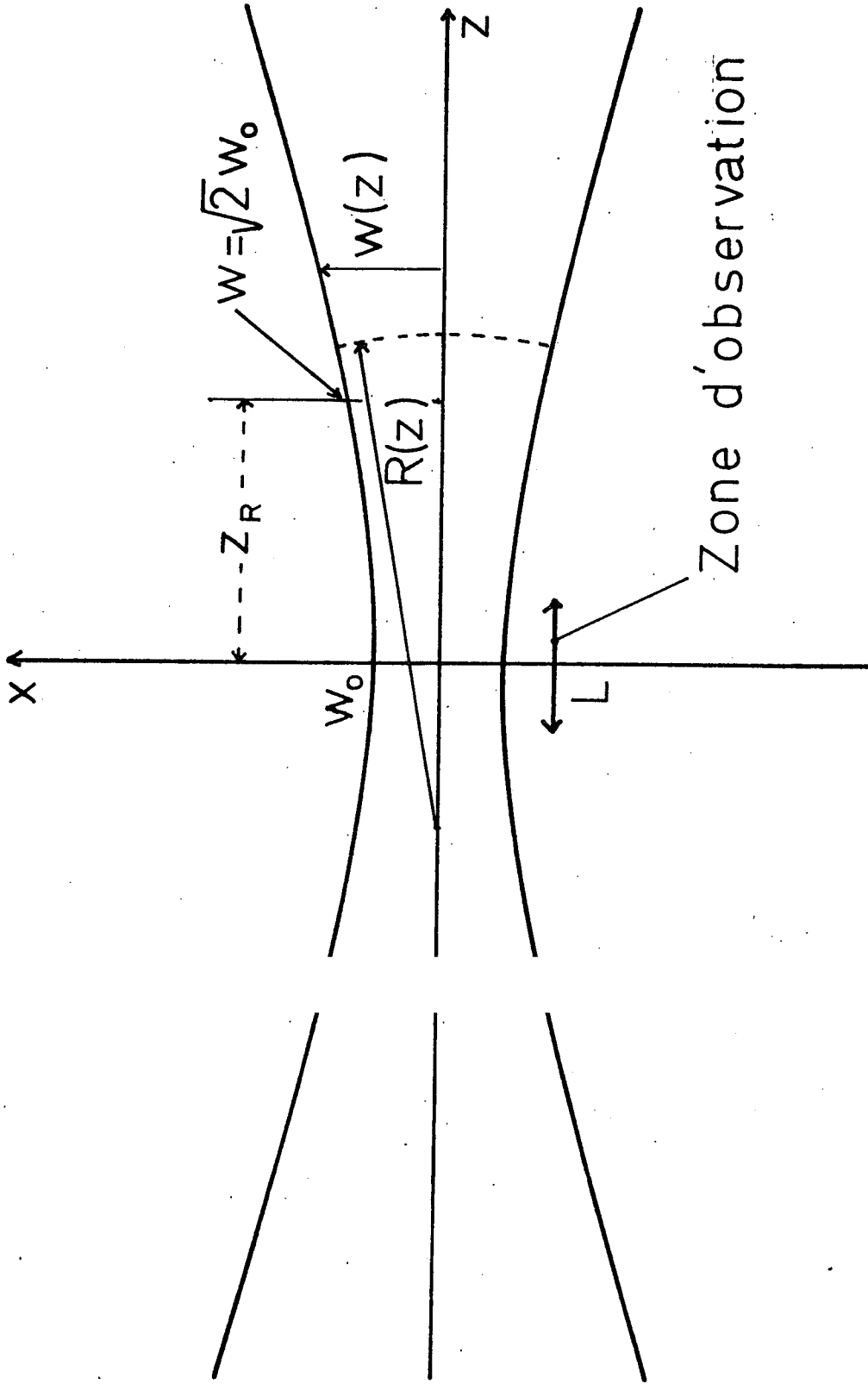


Figure I - 5

et dans le cas de l'ionisation multiphotonique ⁽⁸⁾. Dans nos expériences nous utilisons toujours un laser monomode et nous ne nous intéressons donc plus à ce genre de problèmes.

III - FORME DES RAIES D'ABSORPTION A DEUX PHOTONS EN ABSENCE DE COLLISIONS

Dans cette partie nous calculons l'effet du temps de traversée du faisceau laser. Ce calcul a déjà été fait par BORDE ⁽⁹⁾. Nous le reprenons dans un formalisme différent.

1°/ Description du faisceau laser

Nous utilisons des lasers monomodes TEM₀₀. Le champ électromagnétique est alors décrit par un mode gaussien. L'amplitude du champ électrique a pour expression (10, 11) :

$$E(x, y, z, t) = E_0 e^{-\frac{x^2 + y^2}{W(z)^2}} e^{-i[\omega_L t - kz + \Phi(z)]} e^{+ik \frac{x^2 + y^2}{2R(z)}} \quad (I-26)$$

Les paramètres $W(z)$ et $R(z)$ représentent le diamètre et le rayon de courbure du front d'onde à la distance z du point de striction du faisceau (figure I-5). $\Phi(z)$ traduit le déphasage de π au passage du foyer. Nous avons :

$$W(z) = W_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2} \quad (I-27)$$

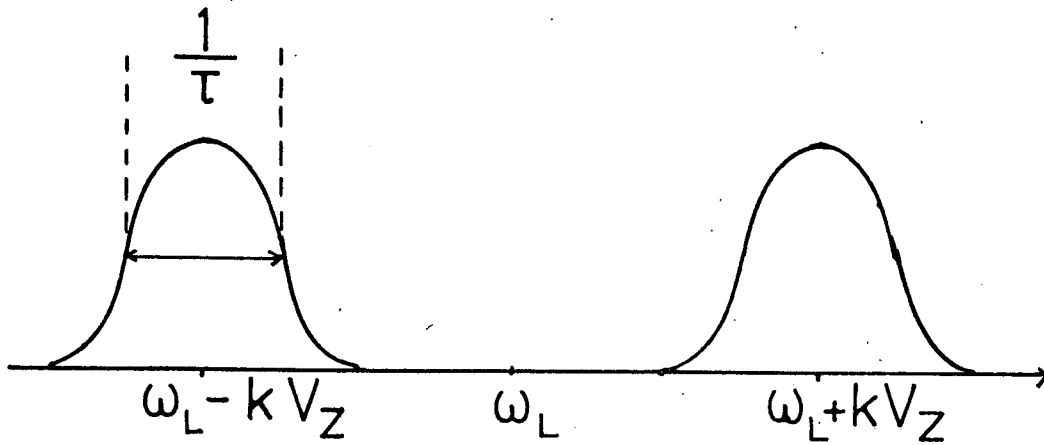
$$R(z) = z \left[1 + \left(\frac{z_R}{z}\right)^2\right] \quad (I-28)$$

$$\Phi(z) = \text{Arc tg } \frac{z}{z_R} \quad (I-29)$$

Le paramètre caractéristique du faisceau z_R , appelé longueur de Rayleigh, dépend du diamètre W_0 du faisceau au point de striction et de la longueur d'onde λ :

$$z_R = \frac{\pi W_0^2}{\lambda} \quad (I-30)$$

(a)



Spectre vu par l'atome dans son référentiel propre

(b)

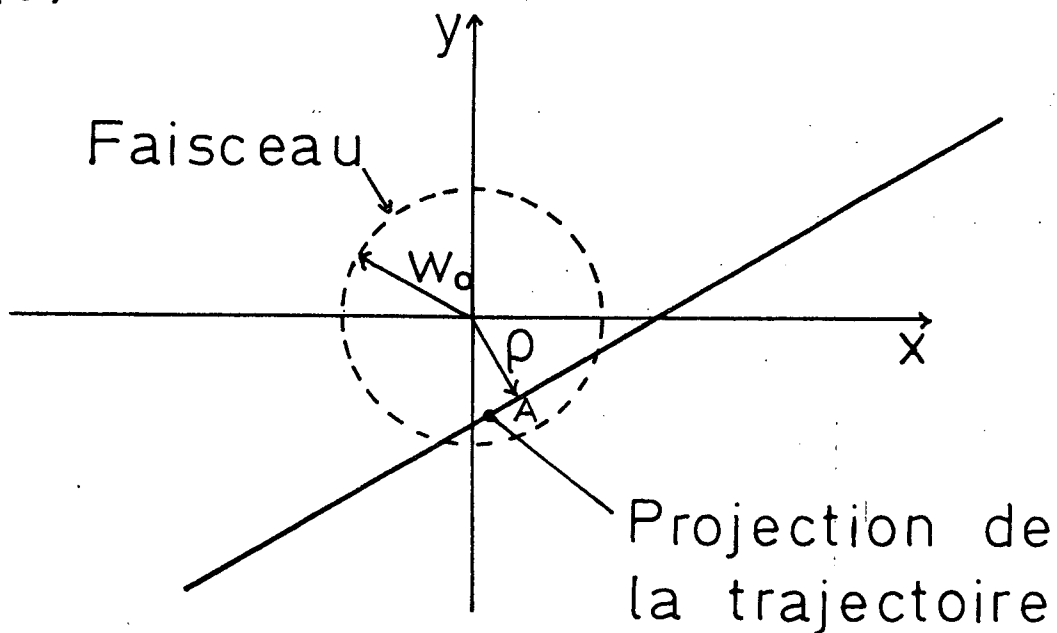


Figure I - 6

Au voisinage du point de striction, le rayon $W(z)$ varie peu tant que z est très petit devant z_R . Nous allons supposer que les atomes sont observés au voisinage du point de striction sur une longueur L petite devant la longueur de Rayleigh z_R . Comme nous le verrons au deuxième chapitre cette condition est bien vérifiée dans nos expériences. Dans ces conditions l'expression du champ électrique se simplifie :

$$E(x,y,z,t) = E_0 e^{-\frac{x^2 + y^2}{W_0^2}} e^{-i(\omega_L t - kz)} \quad (\text{I-31})$$

Dans les expériences d'absorption à deux photons sans effet Doppler, l'atome est en fait soumis à deux ondes se propageant en sens inverses. Il est donc soumis au champ électrique :

$$E(x,y,z,t) = E_0 e^{-\frac{x^2 + y^2}{W_0^2}} [e^{-i(\omega_L t - kz)} + e^{-i(\omega_L t + kz)}] \quad (\text{I-32})$$

2°/ Calcul de l'énergie absorbée par un seul atome

Le calcul de la forme de raie que nous allons faire se fait en deux étapes. Dans un premier temps nous considérons un atome de trajectoire bien définie qui traverse le faisceau et nous calculons l'énergie totale absorbée par cet atome. Nous faisons ensuite la moyenne sur tous les atomes de façon à obtenir la forme de raie.

Considérons un atome de vitesse \vec{V} . Nous calculons d'abord le champ électrique $E(t)$ vu par cet atome. Soit Oz l'axe défini par la direction du faisceau. Si V_r est la projection de la vitesse de l'atome sur le plan xOy , l'atome met un temps de l'ordre de $\tau = \frac{W_0}{V_r}$ pour traverser le faisceau. Dans son référentiel propre l'atome voit deux ondes de largeurs spectrales $\frac{1}{\tau}$ centrées en $\omega_L - kV_z$ et $\omega_L + kV_z$ (figure I-6a). Nous supposons que ces deux ondes sont bien séparées, c'est-à-dire que $kV_z \gg \frac{1}{\tau}$. Soit ρ la distance minimum entre la trajectoire de l'atome et l'axe du faisceau gaussien. Nous avons dessiné sur la figure I-6b la projection de cette trajectoire sur le plan xOy .

Nous pouvons maintenant écrire le champ électrique vu par cet atome ^{*} :

$$E(t) = E_0 e^{-\frac{\rho^2}{W_0^2}} e^{-\frac{V_r^2 t^2}{W_0^2}} [e^{-i(\omega_L - kV_z)t} + e^{-i(\omega_L + kV_z)t}] \quad (I-33)$$

Nous allons maintenant utiliser le formalisme développé précédemment (formule I-23) pour obtenir l'énergie totale W absorbée par l'atome au cours de la traversée du faisceau. Nous devons d'abord calculer le carré du champ électrique :

$$E(t)^2 = E_0^2 e^{-\frac{2\rho^2}{W_0^2}} e^{-\frac{2V_r^2 t^2}{W_0^2}} [2e^{-2i\omega_L t} + e^{-2i(\omega_L - kV_z)t} + e^{-2i(\omega_L + kV_z)t}] \quad (I-34)$$

Le carré du champ électrique est la somme de trois termes.

Le premier correspond à l'absorption sans effet Doppler, les deux suivants à l'absorption avec effet Doppler. Nous calculons maintenant $A(\Omega)$ défini par la formule (I-20) en nous limitant au cas où il y a suppression de l'effet Doppler. Nous obtenons :

$$A(\Omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \frac{W_0}{V_r} E_0^2 e^{-\frac{2\rho^2}{W_0^2}} \exp \left\{ -\frac{(\Omega - 2\omega_L)^2}{8V_r^2/W_0^2} \right\} \quad (I-35)$$

L'énergie totale absorbée par l'atome s'écrit alors (formule I-23) :

$$W(V_r, \rho) = \frac{2\omega_L W_0^2}{\hbar V_r^2} E_0^4 e^{-\frac{4\rho^2}{W_0^2}} |\langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S | e \rangle|^2 \times \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \frac{\Gamma_e}{(\Omega - \omega_{eg})^2 + \frac{1}{4}\Gamma_e^2} \exp \left\{ -\frac{(\Omega - 2\omega_L)^2}{4V_r^2/W_0^2} \right\} \quad (I-36)$$

* Nous supposons ici implicitement que l'atome passe à l'instant zéro au point A défini sur la figure (I-6b) et que ce point A est effectivement dans le plan xOy . Dans le cas général où l'atome passe à l'instant t au point A et où le point A n'est plus dans le plan xOy , il faut introduire des facteurs de phase. Cependant, dans la mesure où nous supposons que $kV_z \gg \frac{1}{\tau}$, ces facteurs disparaissent à la fin du calcul. Nous n'en tenons donc pas compte.

Pour une vitesse donnée, la courbe d'absorption en fonction de la fréquence incidente ω_L est un profil de Voigt.

3°/ Energie absorbée par unité de temps par la vapeur atomique

Nous allons maintenant faire la moyenne sur les trajectoires et sur les vitesses pour obtenir l'énergie absorbée par *unité de temps* P par l'ensemble de *tous* les atomes. Pour cela nous considérons un intervalle de temps ΔT et nous faisons la somme de l'énergie absorbée par tous les atomes qui traversent le faisceau pendant ce temps ΔT . Pour une longueur L du faisceau, nous avons :

$$P \Delta T = N \int_0^{+\infty} d\rho \int_0^{+\infty} L V_r \Delta T f(V_r) W(V_r, \rho) dV_r \quad (I-37)$$

N est le nombre d'atomes par unité de volume et $f(V_r)$ est la distribution de la vitesse radiale :

$$f(V_r) = \frac{M}{kT} V_r e^{-\frac{MV_r^2}{2kT}} \quad (I-38)$$

En remplaçant $W(V_r, \rho)$ par l'expression (I-36) nous obtenons pour la puissance P :

$$P = \alpha \int_0^{\infty} e^{-\frac{MV_r^2}{2kT}} dV_r \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \frac{\Gamma_e}{(\Omega - \omega_{eg})^2 + \frac{1}{4} \Gamma_e^2} \exp \left\{ -\frac{(\Omega - 2\omega_L)^2}{4V_r^2 / W_0^2} \right\} \quad (I-39)$$

Le coefficient de proportionnalité α dépend à la fois des paramètres atomiques et des paramètres décrivant le faisceau :

$$\alpha = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \cdot \frac{\omega_L E_0^4}{h} N L W_0^3 \frac{M}{kT} |\langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S | e \rangle|^2 \quad (I-40)$$

L'expression (I-39) nous montre que pour chaque classe de vitesse le profil d'absorption est un profil de Voigt. Ceci se comprend bien car l'élargissement dû au temps de traversée d'un faisceau gaussien est gaussien.

Il nous reste maintenant à faire l'intégrale sur les vitesses. Celle-ci peut se faire exactement. Pour alléger l'exposé nous avons reporté ce

calcul dans l'appendice B. Après intégration sur les vitesses, nous obtenons :

$$P = \frac{\alpha}{2} \left(\frac{2\pi kT}{M} \right)^{1/2} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\Gamma_e}{(\Omega - \omega_{eg})^2 + \frac{1}{4} \Gamma_e^2} e^{-\frac{|\Omega - 2\omega_L|}{\delta}} d\Omega \quad (I-41)$$

où :

$$\delta = \frac{1}{W_0} \left(\frac{2kT}{M} \right)^{1/2} = \frac{\bar{V}_r}{W_0} \quad (I-42)$$

Nous retrouvons le résultat obtenu par BORDE. Le profil d'absorption est le produit de convolution d'une lorentzienne de largeur Γ_e par une double exponentielle de largeur δ . Le paramètre δ caractérise donc l'élargissement dû au temps de traversée du faisceau. Cette élargissement est donc symétrique et ne déplace pas les raies d'absorption à deux photons.

D'autre part nous pouvons remarquer que l'élargissement dû au temps de traversée du faisceau est représenté par une courbe "pointue", la double exponentielle présentant un point anguleux à son sommet. Cette particularité est liée à la contribution des atomes de faible vitesse. Ces atomes en effet restent plus longtemps dans le faisceau et leur contribution à l'absorption est donc plus importante. De plus, ils mettent plus de temps pour traverser le faisceau, ce qui correspond à un élargissement plus faible. On peut donc dire schématiquement que les atomes de faible vitesse sont ceux qui contribuent le plus à l'absorption et le moins à l'élargissement. C'est cet effet qui a tendance à affiner la courbe qui représente l'élargissement dû au temps de traversée du faisceau.

Notons enfin que, dans le calcul de la puissance absorbée par la vapeur atomique, nous avons surestimé l'énergie absorbée par les atomes de faible vitesse radiale. En effet l'énergie $W(V_r, \rho)$ (formule I-36) est l'énergie absorbée par l'atome entre $t = -\infty$ et $t = +\infty$. Pour un atome immobile à l'intérieur du faisceau, cette énergie est infinie, l'atome pouvant absorber plusieurs fois deux photons. Lorsque nous faisons la moyenne de l'énergie absorbée par tous les atomes pendant le temps ΔT , l'énergie que nous prenons pour les atomes de faible vitesse radiale est trop grande puisque, pendant le temps ΔT , ces atomes n'ont pas le temps de traverser le faisceau. Il est possible d'estimer cette erreur et nous montrons dans l'appendice B que cet effet est négligeable, ce qui justifie en fait le calcul que nous venons de faire.

IV - EFFET STARK DYNAMIQUE

Dans les calculs que nous avons présentés jusqu'ici (I-4) (I-23) les courbes d'absorption sont centrées sur la fréquence atomique $\omega_e - \omega_g$. En fait il est bien connu ⁽¹²⁾ que les fréquences atomiques sont déplacées par effet Stark dynamique. La résonance à deux photons est alors décalée :

$$2\omega = \omega_e + \omega'_e - \omega_g - \omega'_g \quad (\text{I-43})$$

ω'_e et ω'_g sont les déplacements lumineux de chacun des niveaux e et g.

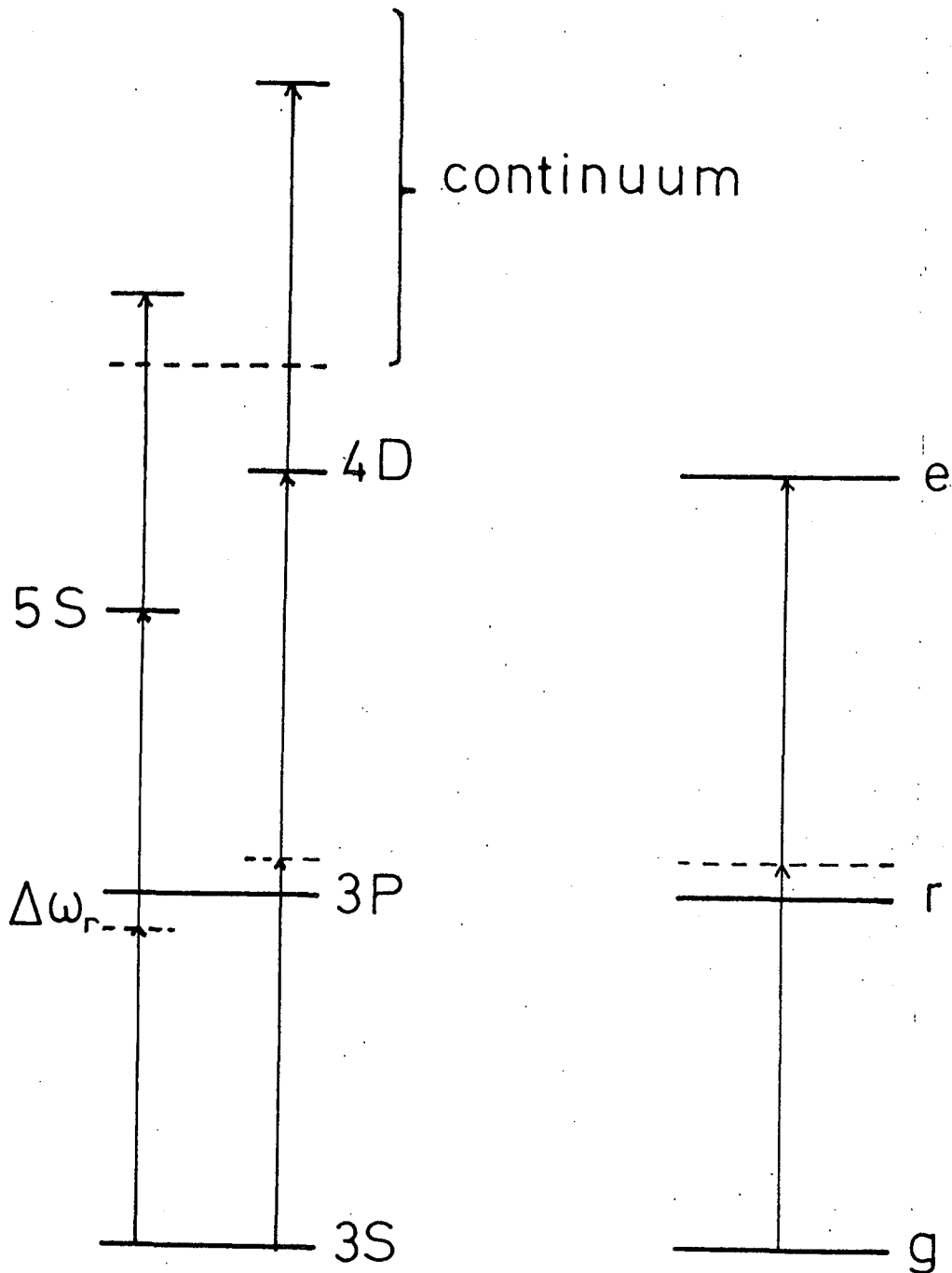
1°/ Calcul des déplacements lumineux

Le calcul de ω'_e et ω'_g se fait très simplement dans le formalisme de l'atome habillé. Nous supposons que l'atome est dans l'état a en présence de n photons. Cet état $|a, n\rangle$ est couplé par l'hamiltonien dipolaire électrique aux états $|b, n-1\rangle$ et $|b, n+1\rangle$. Ces deux couplages correspondent à l'absorption d'un photon et à l'émission stimulée d'un photon. Un calcul de perturbation au second ordre permet d'obtenir les déplacements induits par ces couplages. Dans le cas particulier qui nous intéresse, l'atome est en fait soumis à n_1 photons de l'onde aller et n_2 photons de l'onde retour. Le calcul de ω'_e et ω'_g est immédiat :

$$\omega'_g = \frac{n_1 \omega}{2\varepsilon_0 \hbar} \left[\sum_r \frac{\langle g | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_1 | r \rangle \langle r | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_1^* | g \rangle}{\omega - (\omega_r - \omega_g)} \right] + \frac{n_2 \omega}{2\varepsilon_0 \hbar} \left[\sum_r \frac{\langle g | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_2 | r \rangle \langle r | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_2^* | g \rangle}{\omega - (\omega_r - \omega_g)} \right] \quad (\text{I-44})$$

$$\begin{aligned} \omega'_e = & \frac{n_1 \omega}{2\varepsilon_0 \hbar} \left[\sum_r \frac{\langle e | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_1 | r \rangle \langle r | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_1^* | g \rangle}{\omega_e - \omega_r + \omega} \right] + \frac{n_2 \omega}{2\varepsilon_0 \hbar} \left[\sum_r \frac{\langle e | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_2 | r \rangle \langle r | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_2^* | e \rangle}{\omega_e - \omega_r + \omega} \right] \\ & + \frac{n_1 \omega}{2\varepsilon_0 \hbar} \left[\sum_r \frac{\langle e | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_1^* | r \rangle \langle r | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_1 | g \rangle}{\omega_e - \omega_r - \omega} \right] + \frac{n_2 \omega}{2\varepsilon_0 \hbar} \left[\sum_r \frac{\langle e | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_2^* | r \rangle \langle r | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_2 | e \rangle}{\omega_e - \omega_r - \omega} \right] \end{aligned} \quad (\text{I-45})$$

Figure I-7



Atome de
sodium

Systeme à trois
niveaux

Le déplacement lumineux ω'_e est la somme de quatre termes. Les deux premiers correspondent à l'absorption puis à l'émission d'un photon, les deux derniers correspondent à l'émission stimulée puis à l'absorption d'un photon. L'expression de ω'_g ne contient que deux termes car nous avons négligé les processus correspondant à l'émission d'un photon à partir du niveau fondamental g car ils sont très antirésonnant. Par contre, dans le cas de l'état excité e , il faut tenir compte des quatre termes, le niveau r pouvant être soit au dessus, soit au dessous de l'état e .

2°/ Ordre de grandeur des déplacements lumineux

Pour calculer ω'_e et ω'_g il est nécessaire de calculer la somme sur tout les niveaux intermédiaires r . Cependant il arrive souvent que l'un de ces niveaux ait une contribution prépondérante à cause des dénominateurs d'énergie. Pour illustrer ceci nous allons considérer les transitions à deux photons $3S - 5S$ et $3S - 4D$ de l'atome de sodium que nous avons observées expérimentalement. Un diagramme simplifié des niveaux d'énergie du sodium est représenté sur la figure (I-7). Pour ces deux transitions le niveau $3P$ contribue essentiellement à la probabilité d'absorption à deux photons Γ'_g (formule I-4 et I-5) car il est presque résonnant. Il en est de même pour les déplacements lumineux. Le niveau $3S$ est couplé de manière prépondérante au niveau $3P$ par absorption d'un photon car la force d'oscillateur $3S - 3P$ est beaucoup plus grande que les forces d'oscillateur $3S - nP$ ($n > 4$) et car le dénominateur d'énergie $\Delta\omega_r$ est très petit. Pour les mêmes raisons les niveaux $5S$ et $4D$ sont couplés par émission stimulée essentiellement au niveau $3P$. Par contre ils sont aussi couplés de manière résonnante par absorption d'un photon à des niveaux du continuum. Cependant on peut montrer ⁽¹³⁾ que le déplacement lumineux sera faible si l'on atteint un niveau du continuum loin du seuil d'ionisation. Dans ces conditions on peut considérer l'atome de sodium comme un système à trois niveaux : un niveau fondamental g , un niveau relais r et un niveau excité e .

Si on suppose que les faisceaux aller et retour sont identiques, l'expression des déplacements lumineux s'écrit :

$$\omega'_g \approx - \frac{n\omega}{\epsilon_0 \hbar} \frac{\langle g | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} | r \rangle \langle r | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} | g \rangle}{\Delta\omega_r} \quad (I-46)$$

$$\omega'_e \approx - \frac{n\omega}{\epsilon_0 \hbar} \frac{\langle e | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} | r \rangle \langle r | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} | e \rangle}{\Delta\omega_r} \quad (\text{I-47})$$

Nous avons posé dans ces expressions : $\Delta\omega_r = \omega_r - \omega_g - \omega$.
Notons que les deux déplacements sont de même signe et que si les deux forces d'oscillateurs f_{gr} et f_{re} sont égales, la transition à deux photons n'est pas déplacée. Il est intéressant de comparer les déplacements lumineux ω'_g et ω'_e à la probabilité de transition à deux photons Γ_g . Dans le cas du système à trois niveaux, on obtient en utilisant les formules (I-4) et (I-5) lorsqu'on est à résonance ($\delta\omega = 0$) :

$$\Gamma_g = \frac{n^2}{\epsilon_0^2 \hbar^2} \times \frac{4}{\Gamma_e} \times \left| \left[\frac{\langle e | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} | r \rangle \langle r | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} | g \rangle}{\Delta\omega_r} \right] \right|^2 \quad (\text{I-48})$$

On en déduit immédiatement :

$$\omega'_e \omega'_g = \frac{1}{4} \Gamma_e \Gamma_g \quad (\text{I-49})$$

Or le calcul de Γ_g n'est valable que si l'on ne sature pas la transition à deux photons. Nous avons donc : $\Gamma_g \ll \Gamma_e$. D'où :

$$\omega'_e \omega'_g \ll \frac{1}{4} \Gamma_e^2 \quad (\text{I-50})$$

Si les forces d'oscillateur f_{gr} et f_{re} sont comparables, chacun des déplacements ω'_e et ω'_g est petit devant la largeur naturelle Γ_e de l'état excité et le déplacement de la transition à deux photons est négligeable. Il n'en est plus de même si il y a une différence d'ordre de grandeur entre ces forces d'oscillateur. C'est en particulier le cas des niveaux de Rydberg des alcalins : pour la transition à deux photons 4S - 10D du potassium par exemple le rapport $n = f_{gr} / f_{re}$ est déjà de l'ordre de 10^4 . Les déplacements lumineux ω'_g et ω'_e sont alors dans le même rapport :

$$\frac{\omega'_g}{\omega'_e} = \frac{f_{gr}}{f_{re}} = n \quad (\text{I-51})$$

La condition (I-50) s'écrit alors :

$$\omega'_e \ll \omega'_g \ll \frac{\sqrt{n}}{4} \Gamma_e = 50 \Gamma_e \quad (\text{I-52})$$

Le déplacement lumineux n'est donc plus négligeable lorsqu'on approche de la saturation. Dans ces cas là il faudrait déjà être un facteur 100 au dessous de la saturation pour pouvoir faire une mesure précise de l'écart d'énergie $\hbar(\omega_e - \omega_g)$. Ceci nous montre que les hypothèses pour lesquelles les déplacements lumineux sont négligeables sont très restrictives et il est très facile de s'en affranchir ⁽¹⁴⁾.

Notons enfin que si l'on s'intéresse à la mesure de structure fine ou de structure hyperfine magnétique dans l'état excité les déplacements lumineux sont les mêmes pour les diverses composantes de ces structures. Ceci est dû au fait que l'interaction dipolaire électrique ne fait intervenir que les variables orbitales. Il faut supposer en outre que l'écart d'énergie $\hbar\Delta\omega_T$ est grand devant les structures des différents niveaux considérés. Nous reviendrons plus en détail sur ce point au chapitre III au cours de l'étude des transitions à trois photons sans effet Doppler.

C H A P I T R E I I

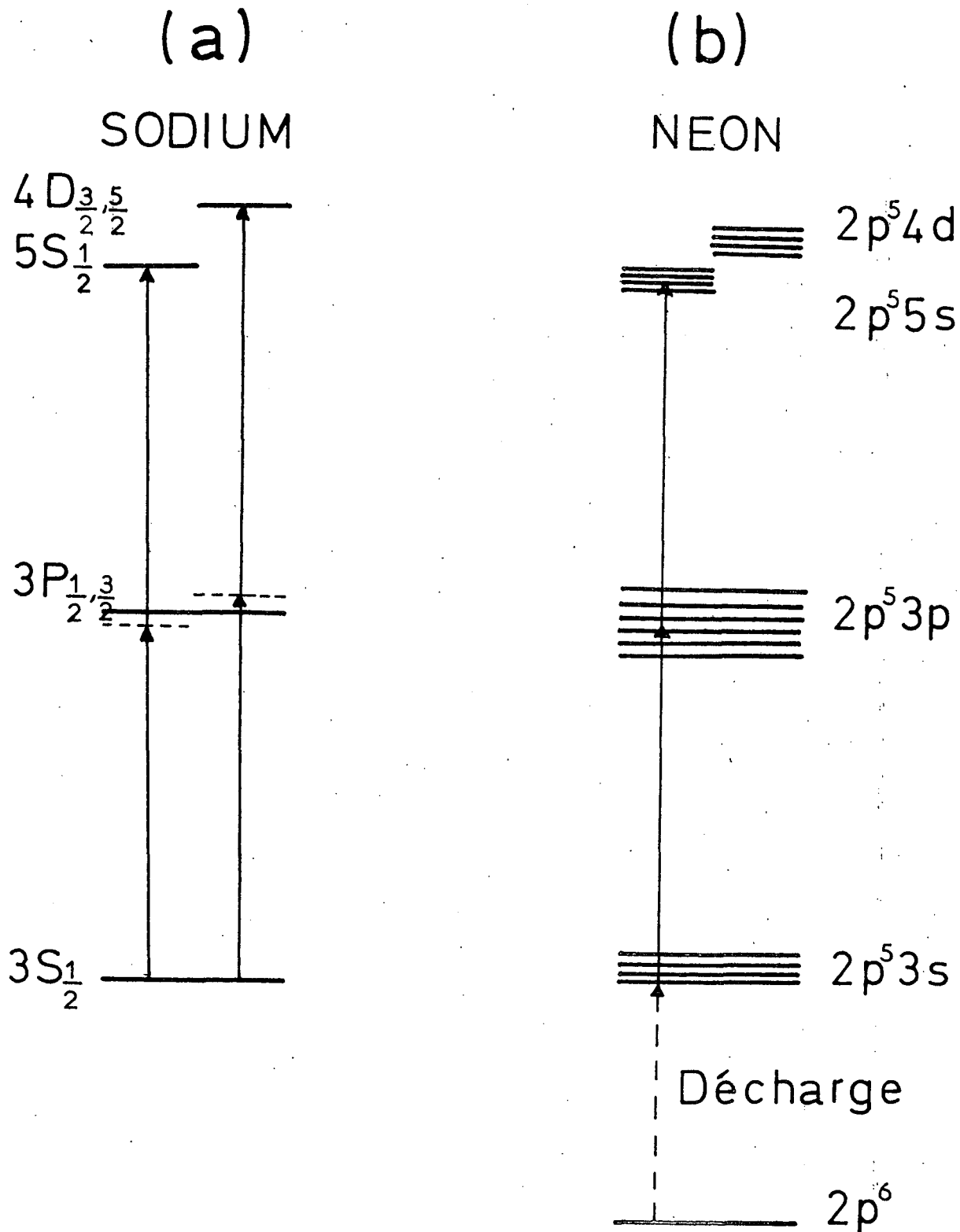
ASPECT EXPERIMENTAL DES TRANSITIONS A DEUX PHOTONS

DANS LES ATOMES DE SODIUM ET DE NEON

Pour réaliser une expérience de spectroscopie à deux photons à haute résolution il est nécessaire de disposer d'une source lumineuse quasi monochromatique, accordable en fréquence, de forte intensité. Seuls les lasers à colorants possèdent ces caractéristiques. Les premières expériences de ce type ont été réalisées à peu près en même temps dans quatre laboratoires différents (1,2,3,4). Toutes ces expériences ont été faites sur l'atome de sodium. Ceci se comprend bien lorsqu'on sait que le colorant le plus performant est la rhodamine 6 G, dont le domaine spectral s'étend de 5600 Å à 6150 Å environ. Or l'atome de sodium peut transiter de l'état 3S vers l'état 5S en absorbant deux photons à 6022,3 Å, ou bien de l'état 3S vers l'état 4D en absorbant deux photons à 5787,3 Å. De plus les niveaux relais prépondérants sont dans ces deux cas les états $3P_{1/2}$ et $3P_{3/2}$: ils sont presque équidistants de l'état fondamental et de l'état excité, ce qui augmente fortement la probabilité d'absorption à deux photons. Ceci est illustré par la figure (II, 1a) qui représente un schéma simplifié des niveaux d'énergie du sodium. Ce sont ces deux transitions que nous avons observées dans l'atome de sodium.

Nous avons par la suite prolongé ces expériences en étudiant les transitions à deux photons dans l'atome de néon. Ceci se comprend bien si l'on compare les niveaux d'énergie du néon à ceux du sodium (figure II, 1b).

Niveaux d'énergie du sodium et du néon



Le spectre d'absorption du néon à partir de l'un des niveaux métastables est tout à fait comparables à celui du sodium à partir du niveau fondamental. Or il est très facile à l'aide d'une décharge de peupler les états métastables du néon. Nous avons ainsi observé plusieurs transitions de l'état métastable $2p^5 3s \ J = 2$ vers divers niveaux des configurations $2p^5 4d$ et $2p^5 5s$.

Le but de ce chapitre est de présenter toutes les techniques expérimentales que nous avons utilisées. La première partie est consacrée à la source de lumière. Nous y décrivons d'abord le laser et les divers asservissements mis au point pour stabiliser la fréquence de la lumière émise. Nous présentons ensuite les techniques de mesure de la longueur d'onde et des petites variations de fréquence.

Dans une deuxième partie nous décrivons les expériences faites sur l'atome de sodium. L'intérêt de ce paragraphe est double. D'une part le montage expérimental des expériences sur le sodium est en quelque sorte le montage type d'une expérience d'absorption à deux photons : toutes les expériences que nous avons faites utilisent ce montage plus ou moins modifié. D'autre part nous en profitons pour présenter les transitions à deux photons $3S - 5S$ et $3S - 4D$ de l'atome de sodium. Ceci nous sera utile au chapitre IV lorsque nous décrirons les expériences d'élargissement par collision que nous avons faites sur ces deux transitions.

Enfin la dernière partie de ce chapitre est consacrée aux transitions à deux photons dans l'atome de néon. Le montage expérimental a dû être alors notablement modifié. En particulier nous avons placé la cellule à l'intérieur d'une cavité résonnante, ce qui a permis un gain important sur le signal.

Schéma du laser à colorant Spectra-Physics 580

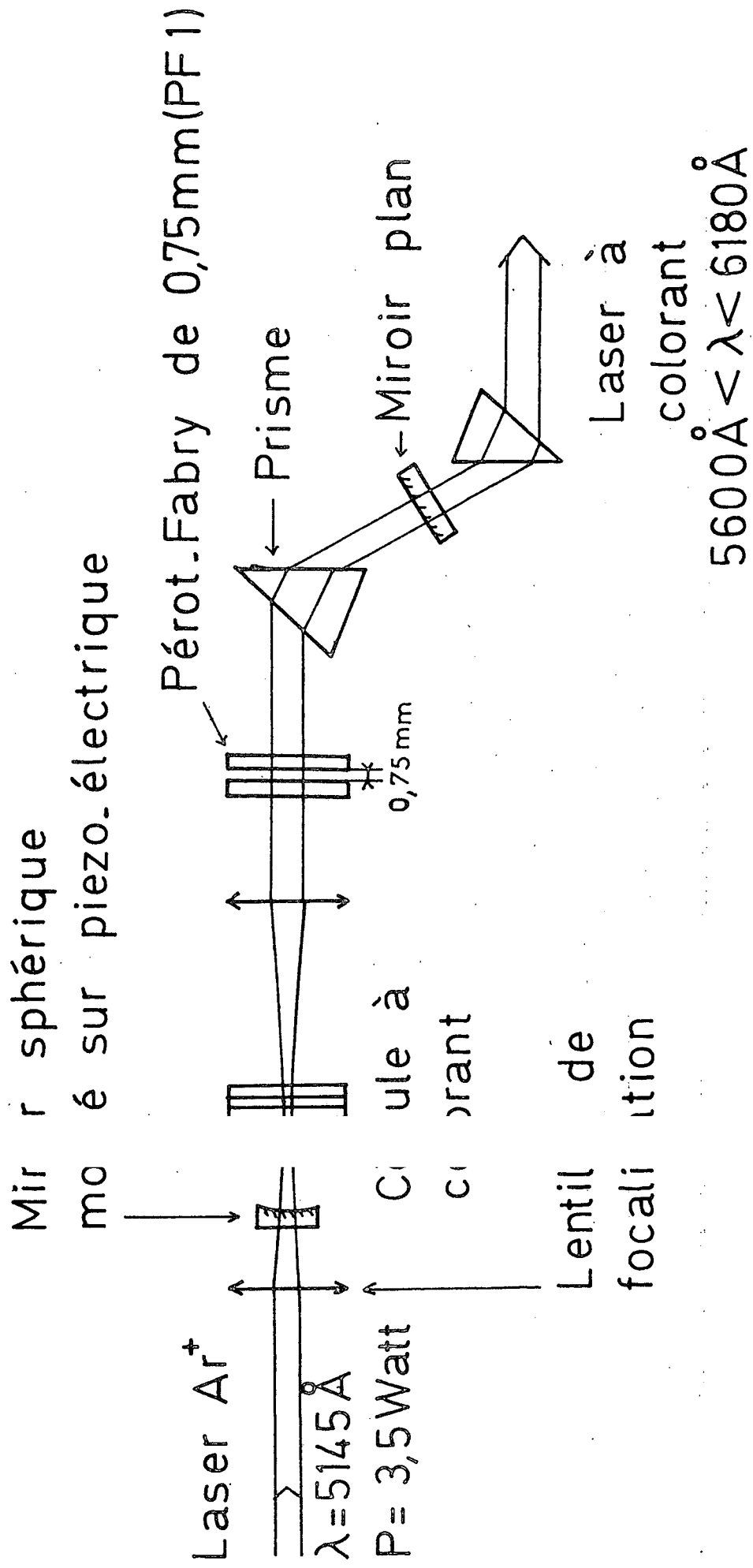


Figure II - 2

I - DESCRIPTION DE LA SOURCE DE LUMIERE

Nous décrivons dans cette partie la source lumineuse et les techniques d'interférométrie utilisées pour la mesure des longueurs d'onde.

1°/ Source lumineuse

Nous avons utilisé comme source lumineuse un laser à colorant continu Spectra Physics 580 pompé par la raie 5145 Å d'un laser à argon ionisé. Le plan de ce laser est donné sur la figure (II-2). Le laser à argon est focalisé sur la cellule à colorant à l'aide d'une lentille qui n'est pas parfaitement achromatique. C'est pour cette raison que nous n'utilisons pas le laser à argon en toutes raies, les diverses longueurs d'onde n'étant pas focalisées au même endroit. Ce laser à colorant est rendu monomode à l'aide d'un prisme et d'un étalon Pérot Fabry de 0,75 mm d'épaisseur (PF 1). Nous avons utilisé comme colorant la Rhodamine 6 G : ce laser fonctionne alors en régime monomode de 5600 Å à 6180 Å environ. Au maximum de rendement de la Rhodamine 6 G (vers 5800 Å) la puissance obtenue est de 40 mWatt pour 1 Watt de pompe. Cependant il est facile d'augmenter la puissance de pompe. Il faut alors défocaliser le laser à argon de manière à augmenter la taille de la zone irradiée de la cellule à colorant. Il faut ensuite rapprocher légèrement le miroir sphérique de la cellule à colorant : on augmente ainsi le diamètre du faisceau du laser à colorant au niveau de la cellule. Dans ces conditions le laser à colorant délivre une puissance d'environ 180 mWatt à 5800 Å pour une puissance de pompe de 3,5 Watt.

Le miroir sphérique et l'étalon Pérot Fabry sont collés sur des céramiques piezo électriques. En ajustant le rapport des tensions imposées à ces céramiques on peut balayer le laser sur une plage de 5000 MHz environ. Cependant le linéarité du balayage n'est pas très bonne à cause de l'hystérésis et des non-linéarités des céramiques et il y a dans ces conditions de nombreux sauts de modes. C'est pourquoi nous avons installés divers systèmes d'asservissements qui permettent d'obtenir un balayage linéaire sans saut de mode.

Asservissement en intensité

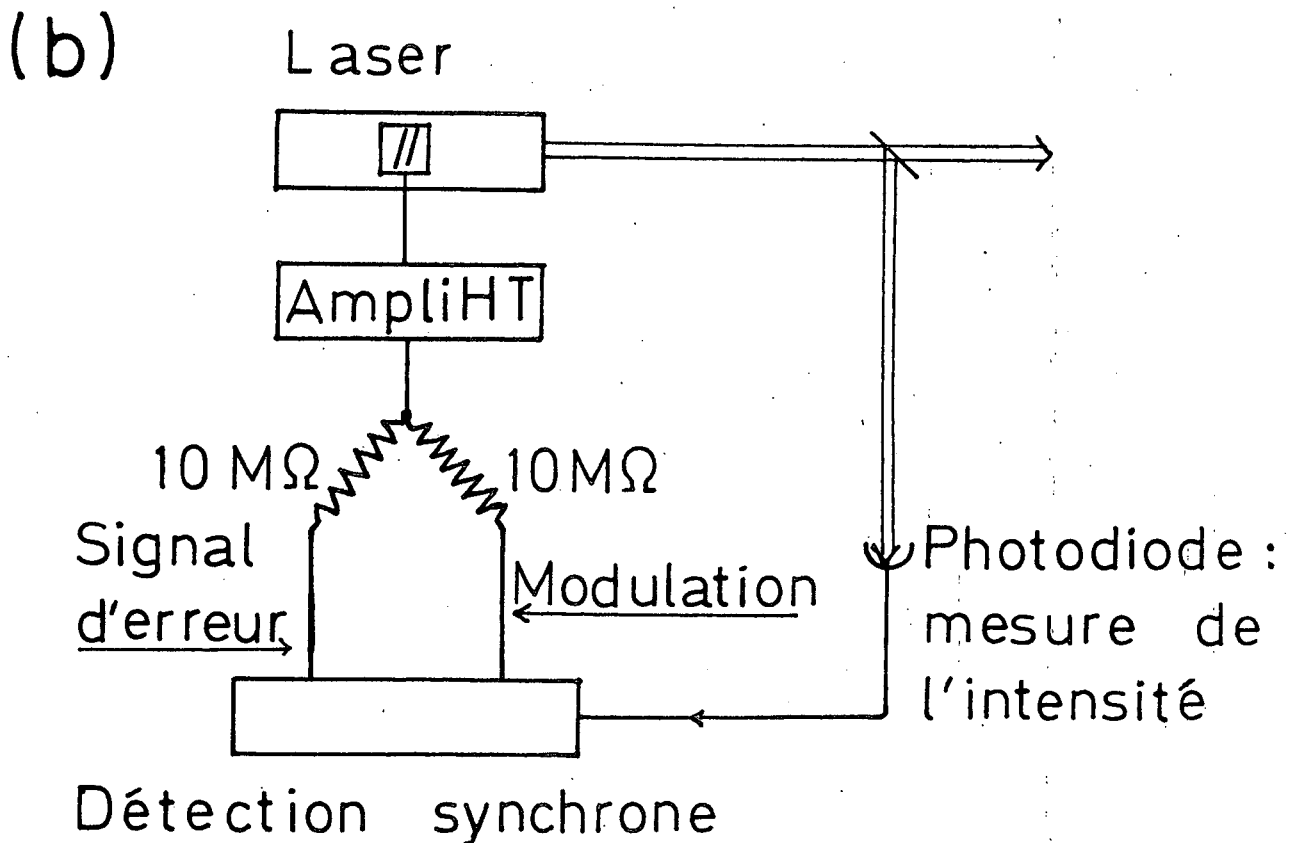
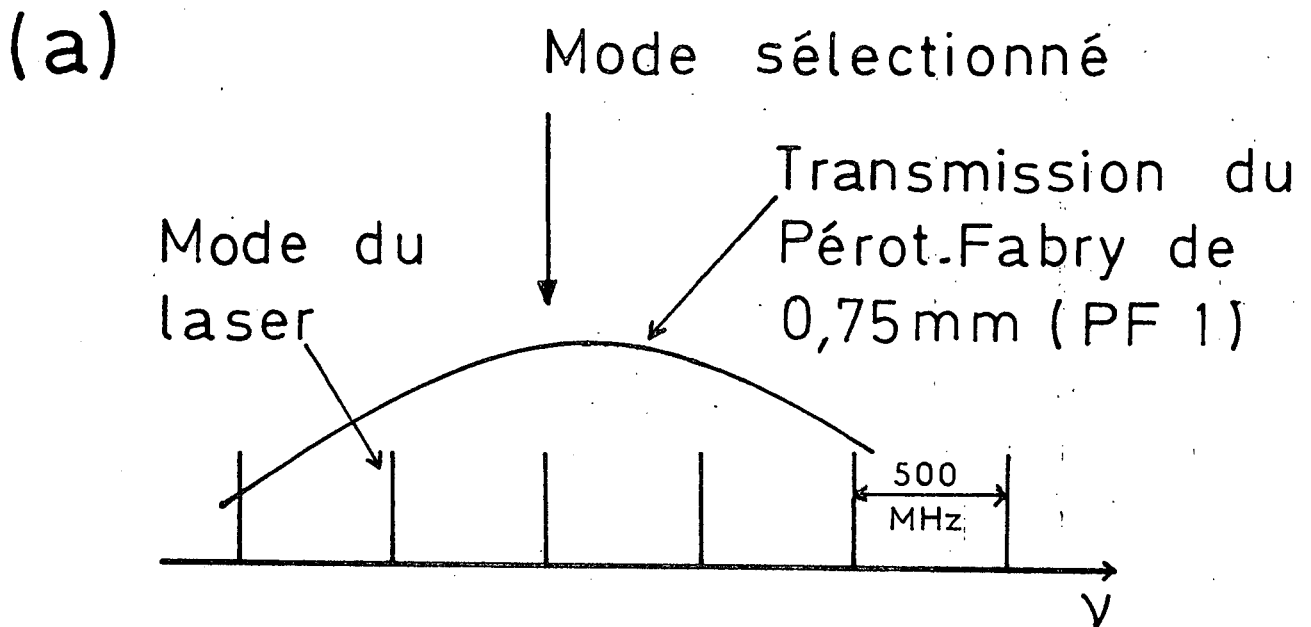


Figure II _3

a) Asservissement de l'étalon Fabry Pérot interne à la cavité laser (PF1)

La cavité du laser définit un certain nombre de modes distants de 500 MHz environ. L'étalon Pérot Fabry (PF1) permet de sélectionner l'un de ces modes (Figure II-3a). Pour éviter les sauts de modes il faut que le Pérot Fabry sélectionne toujours le même mode. Le principe de l'asservissement que nous avons installé à cet effet est classique. Nous modulons l'épaisseur du Pérot Fabry à une fréquence d'environ 600 Hz. Le pic de transmission du Pérot Fabry se déplace alors sinusoidalement par rapport au mode du laser et il s'ensuit une modulation de l'intensité du laser. Lorsque la boucle d'asservissement est ouverte, le taux de modulation est de l'ordre de 10 % à 20 %. Nous détectons cette modulation à l'aide d'une détection synchrone et nous l'utilisons comme signal d'erreur. Le schéma de cette boucle d'asservissement est donné sur la figure (II-3b). Cet asservissement supprime totalement les sauts de mode lorsqu'on fait varier la longueur de la cavité du laser.

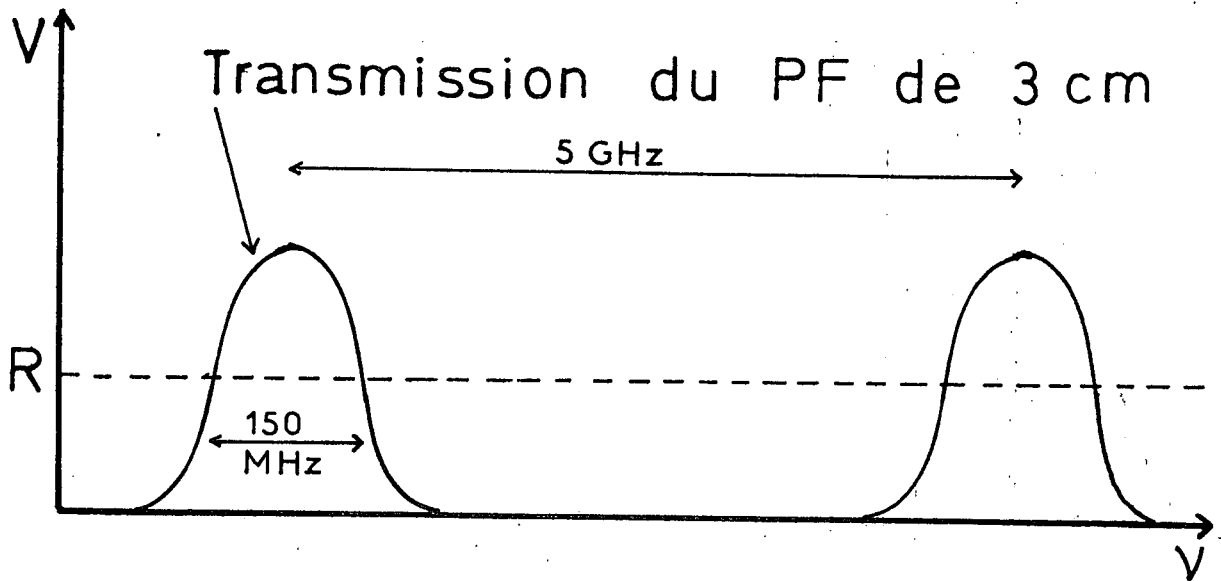
b) Asservissement en fréquence

Pour obtenir un balayage linéaire nous avons asservi la fréquence du laser sur une cavité extérieure balayable par pression. Nous avons utilisé pour cela un Pérot - Fabry de 3 cm d'épaisseur (5000 MHz d'intervalle entre ordre) de finesse 35 (PF2). Nous avons obtenu ainsi un balayage de la fréquence du laser très régulier. La non linéarité du balayage par pression est en effet très faible. Par exemple pour faire varier la fréquence du laser de 5000 MHz il faut balayer la pression de 0 à 25 torr environ, ce qui correspond à une non linéarité de 3/100. Le Pérot Fabry utilisé est monté sur des cales en Cervit, ce qui lui assure une remarquable stabilité thermique. Lorsque on ne fait pas varier la pression, la fréquence du laser dérive de moins de 10 MHz en plusieurs heures. Nous avons ainsi la possibilité de rester centré sur un signal, ce qui peut être très utile.

Le schéma de la boucle d'asservissement est donné sur la figure (II-4). Le laser est asservi sur le flanc de la courbe d'Airy du Pérot Fabry. Nous faisons d'abord le rapport entre l'intensité transmise par le Pérot Fabry et l'intensité incidente à l'aide d'un ratiomètre (Circuit Analog Devices SHA).

Asservissement en fréquence sur le ⁴⁰
Pérot.Fabry de 3 cm

(a)



(b)

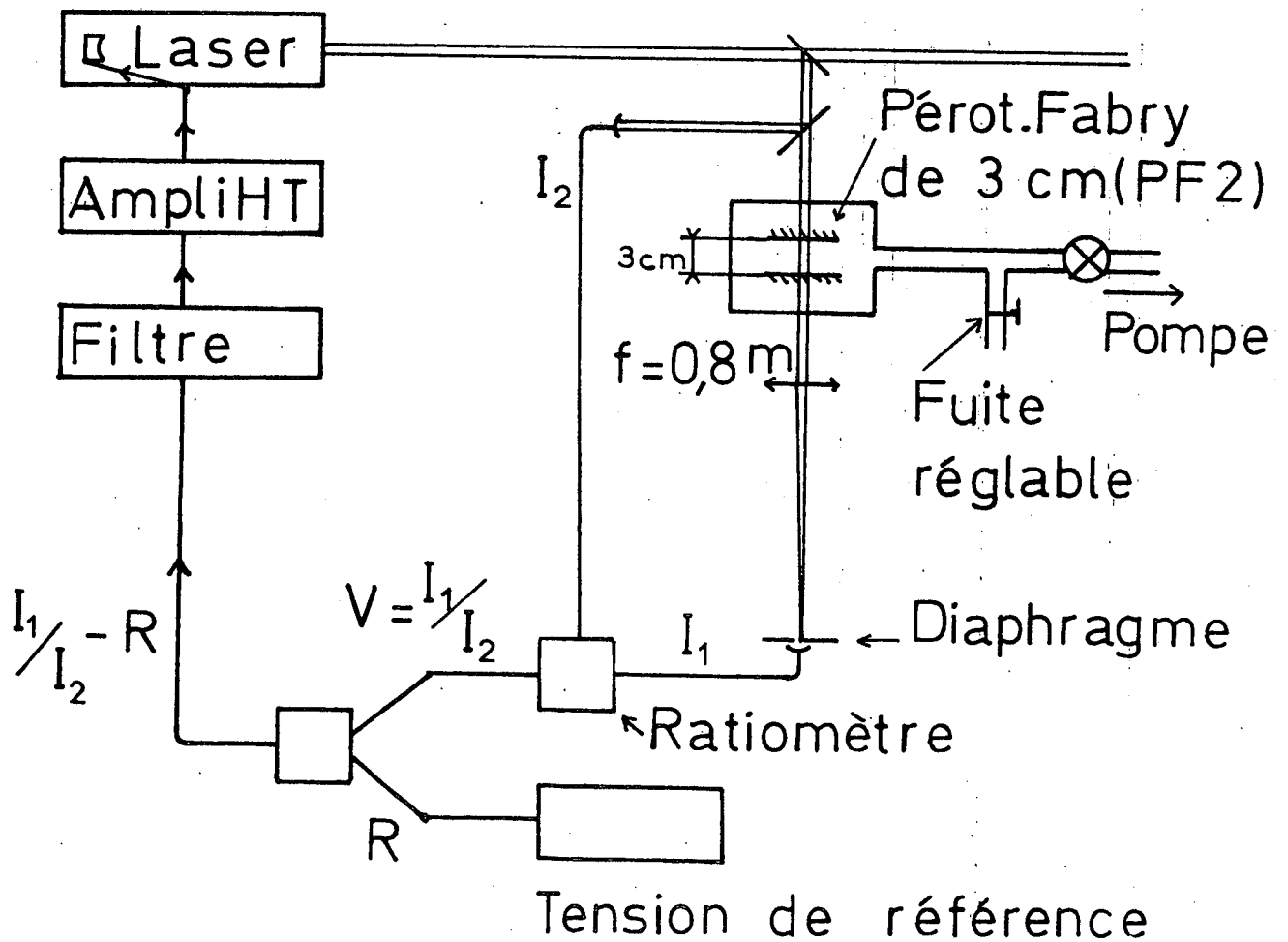


Figure II - 4

Nous faisons ensuite la différence entre le signal V délivré par le ratiomètre et une tension constante R qui sert de référence (figure II-4a). Le signal d'erreur obtenu est filtré puis amplifié avant d'être envoyé sur le piézo-électrique qui supporte le miroir du laser. La bande passante de cet asservissement est limitée à 2 kHz par la capacité et l'inertie mécanique de la céramique piézoélectrique : celle-ci porte à la fois (figure II-2) le miroir du laser et la lentille de focalisation du laser à argon. Malgré cela cet asservissement permet déjà de réduire la largeur de mode du laser de 15 MHz à 7 MHz.

c) Asservissement en intensité

Lorsqu'on balaye la fréquence, l'intensité du laser est modulée, la période de cette modulation étant d'environ 500 MHz. L'origine de cette modulation est peut-être un couplage résiduel entre la cavité du laser à colorant et le laser à argon. Son amplitude varie beaucoup d'un jour à l'autre et peut atteindre jusqu'à 30 %. Cet effet peut être très gênant dans certaines expériences. Nous l'avons supprimé en asservissant la puissance du laser à argon sur la puissance délivrée par le laser à colorant. Cela est très facile avec le laser à argon dont nous disposons (Spectra Physcis modèle 170). Celui-ci possède en effet une position de fonctionnement pour laquelle le laser à argon est asservi en intensité. Il nous a suffi de remplacer la photodiode interne au laser à argon par la photodiode qui nous sert à mesurer la puissance du laser à colorant (les caractéristiques de l'alimentation du laser à argon imposent que cette photodiode soit indépendante de la masse). Cet asservissement supprime totalement les variations lentes d'intensité.

2°/ Mesure approximative des longueurs d'onde

Les signaux d'absorption à deux photons sans effet Doppler sont larges de quelques MHz. Il est donc nécessaire de mesurer la longueur d'onde du laser avec la meilleure précision si l'on veut éviter d'avoir à rechercher le signal sur une trop grande plage de fréquence. Cette mesure de fréquence doit pouvoir se faire rapidement. En effet les lasers à colorant se dérèglent

très facilement et il faut pouvoir à tout instant contrôler la longueur d'onde. Nous utilisons pour cela un monochromateur Jobin Yvon THR et un Pérot Fabry de 5 mm d'épaisseur (PF3) (1 cm^{-1} d'intervalle entre ordre). Ce monochromateur est gradué tous les $0,2 \text{ \AA}$ et on peut lire la longueur d'onde à environ $0,1 \text{ \AA}$ si on a pris la précaution d'étalonner cette graduation à l'aide d'une lampe spectrale. Nous mesurons alors le diamètre des anneaux du Pérot Fabry de 5 mm . La mesure de la longueur d'onde à $0,1 \text{ \AA}$ nous permet de connaître l'ordre k des anneaux du Pérot Fabry et le diamètre des anneaux nous permet de mesurer l'excédant fractionnaire δk à 5% environ. Nous avons ainsi une mesure très rapide de la fréquence du laser à 1500 MHz près. En outre il faut tenir compte du fait que le Pérot Fabry (PF3) est sensible aux variations de température et de pression. Le Pérot Fabry que nous utilisons est monté sur des cales en silice. En fait la dilatation de la silice est partiellement compensée par la variation de l'indice de l'air avec la température. L'effet global est de $6 \times 10^{-7}/^{\circ}\text{C}$, soit $300 \text{ MHz}/^{\circ}\text{C}$. La pièce dans laquelle nous travaillons étant thermostatée à 1° près, nous avons finalement une incertitude de 300 MHz . L'effet des variations de la pression atmosphérique est plus important : une variation de 5 torr correspond à une erreur en fréquence de 1200 MHz . L'erreur totale que nous commettons est donc au plus de 3000 MHz . Avec le même matériel mais en utilisant le Pérot Fabry de 5 mm avec une source blanche pour faire un spectre cannelé, il est possible d'obtenir une précision de 700 MHz environ. Nous avons choisi en fait un compromis entre la précision de la mesure et sa rapidité. Notre but était uniquement de trouver le signal. Nous n'avons pas encore cherché à faire des mesures absolues de longueur d'onde plus précises.

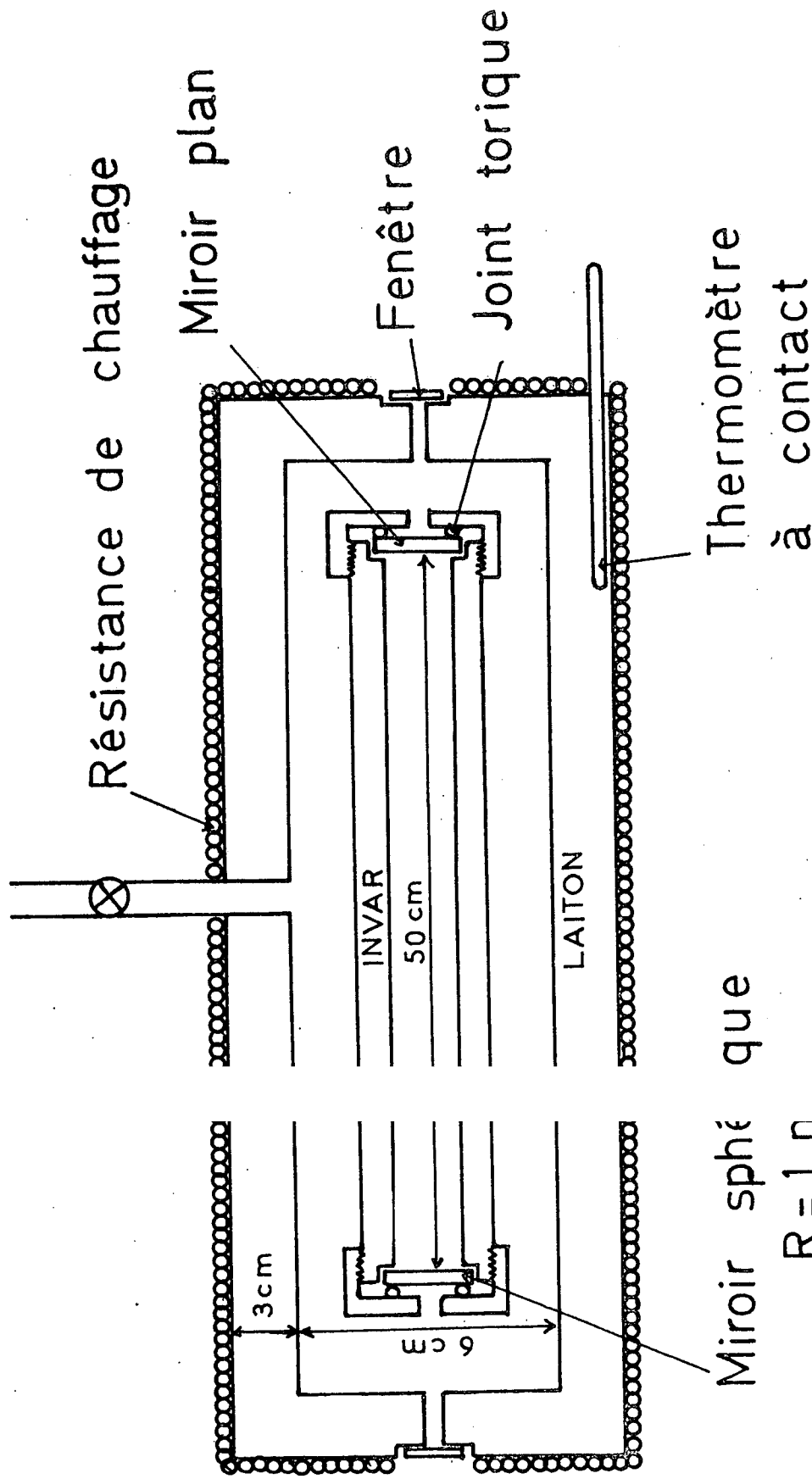
3°/ Mesure précise des petites variations de fréquences

Pour pouvoir faire des mesures de petites structures (déplacement isotopique, structure fine ou hyperfine) il est nécessaire de pouvoir mesurer avec précision les petites variations de la fréquence du laser (de l'ordre de quelques GHz). Nous utilisons pour cela un Pérot Fabry plan focal de 50 cm de long (PF4).

a) Description du Pérot Fabry

Ce Pérot Fabry a été construit au laboratoire. La figure (II-5) en

Rompe a vide



! rot. Fabry plan. focal de 50 cm (PF4)

Figure II - 5

donne le plan. Il est constitué par un tube d'invar dont les deux extrémités sont bien parallèles. Les deux miroirs sont appuyés par simple pression. Nous avons utilisé les miroirs standard M.T.O. de 94 % de coefficient de réflexion. L'un des miroirs est plan et le rayon de courbure du miroir sphérique est de 1 m. Cet interféromètre est donc équivalent à un Pérot Fabry confocal replié sur lui-même. Son intervalle entre ordre est donc de 75 MHz environ.

Pour mesurer avec précision une structure on balaye lentement une zone comprenant une résonance à deux photons et deux pics du Pérot Fabry. La mesure est donc d'autant plus rapide que l'intervalle entre ordre est plus petit. De plus les non linéarités du balayage par pression sont proportionnelle ~~à l'amplitude de~~ la variation de fréquence considérée. Pour une variation de fréquence ~~d'amplitude~~ égale à 75 MHz ces non linéarités sont de $5 \cdot 10^{-4}$: on peut donc considérer que le balayage par pression est parfaitement linéaire entre deux pics du Pérot Fabry

b) Stabilité du Pérot Fabry (PF4)

Ce Pérot Fabry a d'abord été placé sous vide pour éviter les effets dus aux variations de l'indice de l'air. Le vide limite de la pompe primaire que nous utilisons pour cela est de l'ordre de 10^{-3} torr. Ceci correspond à une précision en fréquence de 0,2 MHz.

Par ailleurs il a été nécessaire de thermostatier ce Pérot Fabry. En effet le coefficient de dilatation de l'invar que nous avons utilisé est d'environ $2 \cdot 10^{-6}/^{\circ}\text{C}$, ce qui provoque un déplacement de fréquence de 1200 MHz/ $^{\circ}\text{C}$. Le Pérot Fabry a donc été placé dans un tube en laiton de 3 cm d'épaisseur. Ceci augmente l'inertie thermique du système et diminue les gradients de températures dus aux irrégularités de chauffage. Le chauffage du thermostat est commandé par un thermomètre à contact gradué au dixième de degré. On peut estimer la stabilité du contact d'un tel thermomètre au centième de degré environ. Pour diminuer les écarts de température nous avons utilisé un montage que nous a indiqué Jacques MEUNIER. Le courant de chauffage est fourni par un autotransformateur variable qui est commandé par un moteur très lent. Lorsque la température est trop basse le moteur augmente la tension V appliquée sur

les résistances de chauffage. Lorsque la température est trop haute, le moteur fait diminuer cette tension V et on applique seulement une fraction de cette tension (70 % environ). Avec cette technique la puissance de chauffage n'est que partiellement modulée, ce qui diminue les écarts de température. Le rôle du moteur est d'ajuster automatiquement la puissance moyenne de chauffage aux pertes thermiques. Grâce à ce système les dérives à court terme (quelques heures) ont été totalement éliminées. Malheureusement les oscillations de température du thermostat sont encore trop importantes et la position des pics du Pérot Fabry fluctue d'environ 1 MHz autour d'une valeur moyenne (ceci correspond à des fluctuations de température de l'ordre de 10^{-3} °C). C'est ce qui limite actuellement la précision de nos mesures.

Cette stabilité de 1 MHz n'est valable que sur des temps de l'ordre de la journée. A plus long terme la stabilité du Pérot Fabry est bien sûr moins bonne. D'une part la température de fonctionnement du thermostat n'est certainement pas stable à long terme au millième de degré et d'autre part l'invar est un matériau qui vieillit relativement mal ; en un an la longueur du tube d'invar peut varier de 10^{-6} en valeur relative (5).

c) Mesure de l'intervalle entre ordre du Pérot Fabry de 50 cm

L'intervalle entre ordre du Pérot Fabry de 50 cm (PF4) étant en quelque sorte l'unité de base de toutes les mesures que nous avons faites il était nécessaire de la mesurer avec une très bonne précision. Généralement, pour mesurer l'épaisseur d'un Pérot Fabry, on mesure les excédents fractionnaires des longueurs d'onde d'une lampe spectrale. Ce n'est plus possible dans ce cas, l'intervalle entre ordre de 75 MHz étant trop petit par rapport à la largeur des raies des lampes spectrales (1000 MHz environ). C'est pourquoi nous avons procédé en deux étapes. Tout d'abord nous avons comparé l'épaisseur du Pérot Fabry de 50 cm à celle du Pérot Fabry de 3 cm (PF2) qui nous sert pour l'asservissement en fréquence du laser. Il suffit pour cela d'envoyer le faisceau laser simultanément à travers les deux Pérot Fabry et de comparer la position des modes de l'un des Pérot Fabry par rapport à ceux de l'autre. La mesure est assez précise puisque la largeur d'un mode du Pérot Fabry de 3 cm (150 MHz environ) est comparable à l'intervalle entre ordre du Pérot Fabry de

50 cm (PF4). Nous avons pu ainsi mesurer le rapport R des épaisseurs des deux Pérot Fabry à 10^{-6} près. Nous avons obtenu pour ce rapport :

$$R = 66,8246 \text{ (1)}$$

Pour mesurer l'épaisseur du Pérot Fabry de 3 cm le plus précis eut été d'analyser la lumière émise par une lampe spectrale en balayant le Pérot Fabry par pression et en séparant les raies à l'aide d'un monochromateur. Cependant cela nécessite un montage spécial et c'est pour cette raison que nous ne l'avons pas encore fait. Dans un premier temps nous nous sommes contentés d'asservir le laser sur un mode du Pérot Fabry et de mesurer la longueur l'onde du laser avec le monochromateur et un spectre cannelé. Par cette méthode nous avons mesuré l'intervalle entre ordre du Pérot Fabry de 3 cm à un peu mieux que 10^{-4} près. Par la suite nous avons utilisé les raies d'absorption à deux photons que nous avons observées dans l'atome de néon pour calibrer ce Pérot Fabry. Les longueurs d'onde correspondantes sont relativement bien connues (à 30 MHz environ) et, les raies d'absorption à deux photons étant très fines, il est possible de mesurer les excédents fractionnaires correspondants à quelques 10^{-3} . Nous donnons quelques détails sur cette méthode dans la troisième partie de ce chapitre. Nous avons obtenu ainsi une précision de 10^{-5} environ. Nous avons trouvé pour l'intervalle entre ordre I du Pérot Fabry de 3 cm (PF2) la valeur suivante :

$$I = 4996,63 \text{ (5) MHz}$$

On en déduit la valeur i de l'intervalle entre ordre du Pérot Fabry de 50 cm (PF4) :

$$i = 74,7722 \text{ (8) MHz}$$

La précision, de l'ordre de 10^{-5} , est largement suffisante pour les mesures que nous avons faites jusqu'ici.

II - EXPERIENCES SUR L'ATOME DE SODIUM

Nous avons observé sur l'atome de sodium les transitions à deux photons à partir de l'état fondamental $3S_{1/2}$ vers les états excités $4D_{3/2,5/2}$ et $5S_{1/2}$. Nous allons d'abord décrire le montage expérimental.

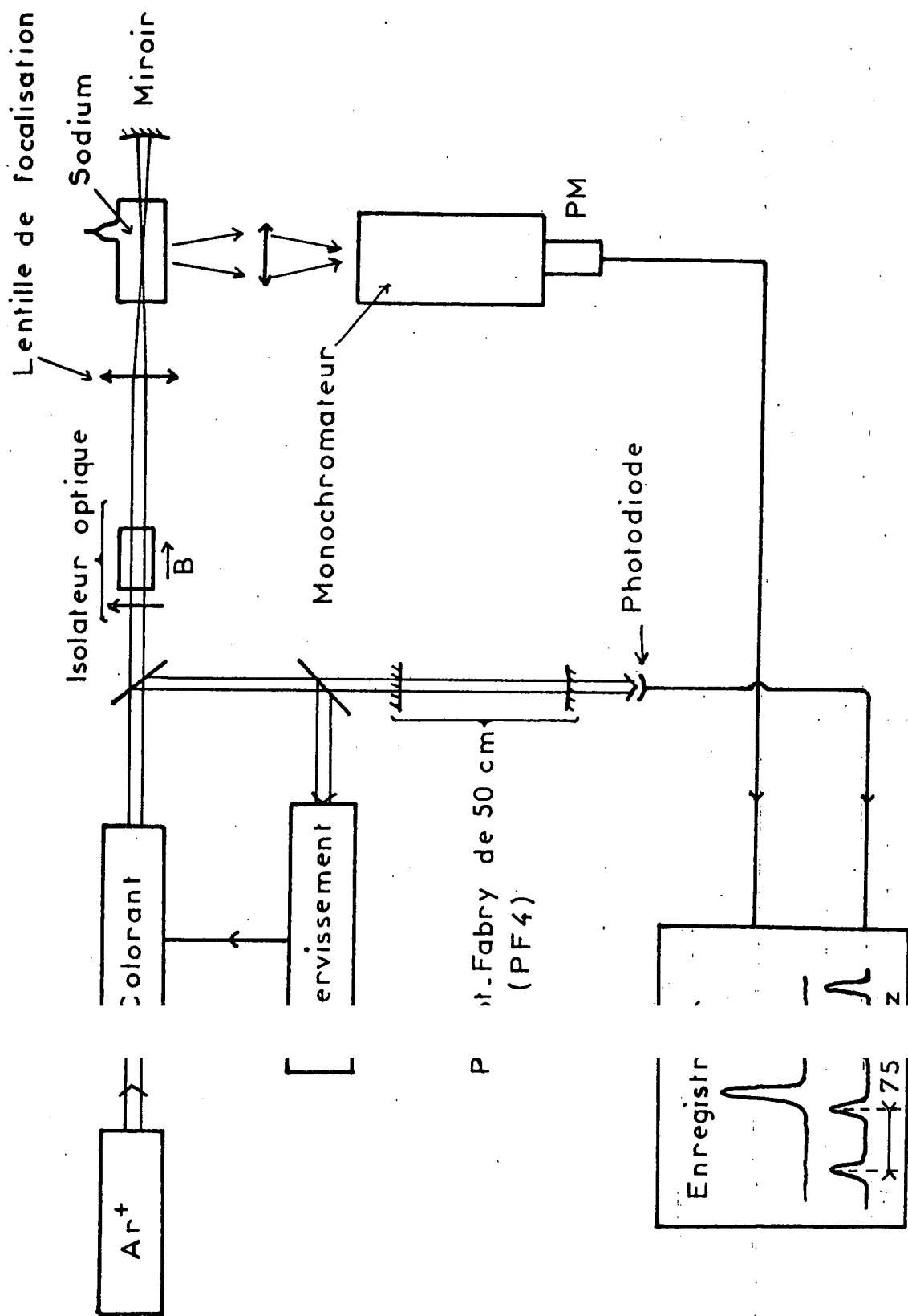
1°/ Dispositif expérimental

Le schéma de l'ensemble du dispositif expérimental est donné sur la figure (II-6). Pour augmenter le signal le faisceau laser est focalisé dans la cellule à l'aide d'une lentille de 20 cm de focale. Il est ensuite refocalisé au même point par un miroir sphérique. La détection se fait en sélectionnant à l'aide d'un monochromateur ou de filtres interférentiels les photons de fluorescence réémis vers les niveaux $3P_{1/2}$ et $3P_{3/2}$. Pour fabriquer les cellules à sodium nous utilisons un verre spécial (verre Corning 1720) qui n'est pas attaqué par le sodium en dessous de 300°C environ. Ceci nous permet éventuellement d'obtenir une pression de 10^{-3} torr.

L'expérience proprement dite est séparée du laser par un isolateur optique. Ce dernier sert à éviter que le faisceau réfléchi ne revienne dans le laser : dans ce cas le laser est en effet couplé avec une cavité extérieure et cela provoque de nombreux sauts de modes. Généralement nous utilisons pour cela la rotation Faraday. En traversant un flint placé dans un champ ^{linéaire dorsal} magnétique la polarisation du faisceau aller tourne de 45° . Au retour la polarisation du faisceau réfléchi tourne encore de 45° et ce faisceau est alors éliminé par le polariseur. Il est aussi possible d'utiliser une lame $\lambda/4$. A l'aller la lame quart d'onde transforme la polarisation linéaire en polarisation circulaire. Au retour cette polarisation circulaire se transforme en polarisation linéaire perpendiculaire à la polarisation incidente. Cette méthode oblige de travailler en polarisation circulaire, ce qui n'est pas toujours possible. Dans le cas d'une transition $J = 1/2 \rightarrow J = 1/2$ par exemple on a la règle de sélection $\Delta m_J = 0$ et il est donc interdit d'absorber deux photons σ^+ . C'est en particulier le cas de la transition $3S - 5S$ dans l'atome de sodium. On est obligé dans ce cas d'utiliser l'effet Faraday.

2/ les bras

Figure II_6



2° / Transition à deux photons entre les niveaux 3S et 4D du sodium

La figure (II-7) donne un schéma plus détaillé des niveaux d'énergie du sodium. Le noyau de l'atome de sodium a un spin $I = 3/2$ et il faut donc tenir compte de la structure hyperfine. L'état fondamental $3S_{1/2}$ se décompose en deux niveaux de structure hyperfine $F = 1$ et $F = 2$ séparés par $1771,6 \text{ MHz}$ ⁽⁶⁾. L'état excité $4D$ est formé de deux niveaux de structure fine $J' = 3/2$ et $J' = 5/2$. Cette structure fine est inversée à cause d'un effet de polarisation du coeur par l'électron externe ⁽⁷⁾. Lorsque nous avons commencé ce travail aucune mesure des constantes de structure hyperfine des niveaux $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$ n'avait été faite. Cependant un calcul d'ordre de grandeur ⁽⁸⁾ permet de montrer que ces structures sont petites devant la largeur naturelle du niveau $4D$ qui vaut $3,1 \text{ MHz}$ environ. Depuis P.K. SHENK et S. PILLOFF ⁽⁹⁾ ont mesuré la constante de structure hyperfine du niveau $4D_{3/2}$. Ils ont obtenu

$$A_{3/2} = 0,51 \pm 0,07 \text{ MHz}$$

Par ailleurs les mesures de taux de polarisation que nous avons faites permettent de donner un ordre de grandeur de cette structure hyperfine. Ces expériences seront présentées au chapitre V (§IV -2°-b). Nous dirons simplement pour l'instant que ces mesures donnent un résultat plus petit que celui de P.K. SHENK et S. PILLOFF. Il semble donc tout à fait justifié de négliger la structure hyperfine de l'état $4D$. En conclusion l'on peut donc dire que l'état fondamental se décompose en deux niveaux de structure hyperfine et l'état excité en deux niveaux de structure fine. Le spectre d'absorption à deux photons est donc formé de quatre raies. C'est ce que nous observons expérimentalement (Figure II-8).

Le calcul de l'intensité relative des raies a été détaillé dans la thèse de GRYNBERG ⁽⁸⁾ et peut se retrouver facilement à partir des formules (I-4) et (I-13). On obtient pour l'intensité de la raie en absorption :

$$A_{F_g \rightarrow J_e} = \frac{4n_1 n_2}{\epsilon_0^2 \Gamma_e} \left(\sum_q |a_q|^2 \right) \frac{\langle eL_e || Q^2 || gL_g \rangle}{5(2J_g+1)^2(2I+1)} (2F_g+1)(2J_e+1) \quad (\text{II-1})$$

L'intensité des raies d'absorption est donc proportionnelle au produit des dégénérescences des niveaux initiaux et finaux. Pour le calcul exact des

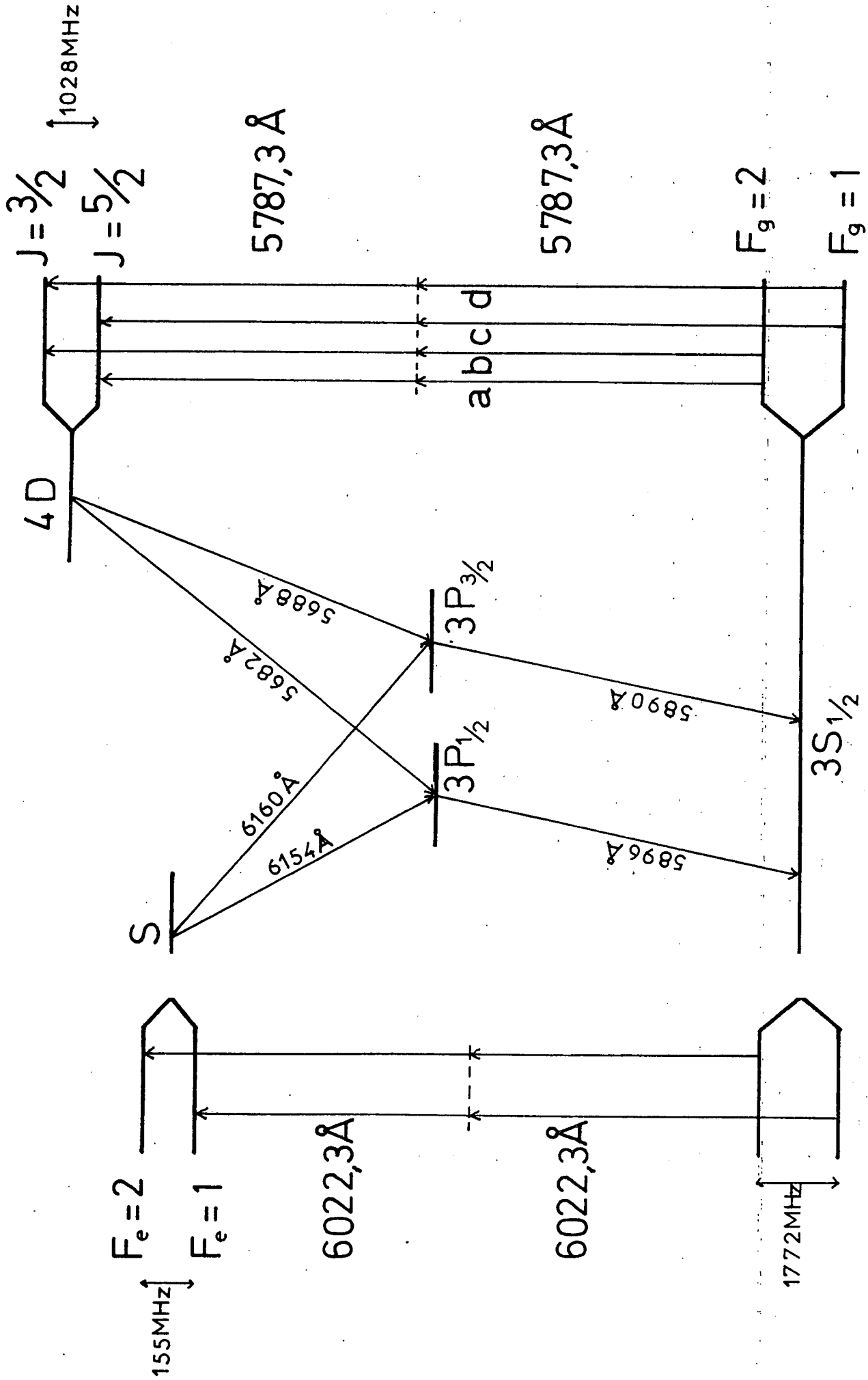


Figure II_7

intensités observées, il faut aussi tenir compte des intensités de fluorescence qui dépendent de la géométrie de l'expérience. Le calcul détaillé a été fait dans l'appendice C. Lorsqu'on tient compte de ces facteurs on trouve pour le rapport des intensités des deux raies excitées à partir d'un même niveau hyperfin :

$$\frac{I(4D_{5/2})}{I(4D_{3/2})} = \frac{16}{11}$$

Ce rapport est peu différent du rapport des populations qui vaut $3/2$. En tenant compte des intensités il est alors très facile d'identifier les raies observées. Les raies (a), (b), (c) et (d) correspondent aux transitions :

$$(a) : 3S_{1/2} \quad F_g = 2 \rightarrow 4D_{5/2}$$

$$(b) : 3S_{1/2} \quad F_g = 2 \rightarrow 4D_{3/2}$$

$$(c) : 3S_{1/2} \quad F_g = 1 \rightarrow 4D_{5/2}$$

$$(d) : 3S_{1/2} \quad F_g = 1 \rightarrow 4D_{3/2}$$

Les raies (a) et (c) et (b) et (d) sont distantes de 886 MHz, ce qui correspond à la moitié de la structure fine de l'état fondamental. La distance entre les raies (a) et (b) d'une part et (c) et (d) d'autre part permet de mesurer la structure fine de l'état excité. Cependant, lorsque nous avons commencé ces expériences nous n'avions pas encore installé le balayage par pression de la fréquence du laser ni le Pérot Fabry de 50 cm. Nous n'avons donc pas fait une mesure directe et nous avons déduit la valeur de la structure fine de l'état 4D à partir du spectre d'excitation en champ magnétique fort (effet Paschen-Back). Ces expériences sont détaillées dans les références (8,10). Nous avons alors obtenu pour l'écart de structure fine :

$$E(4D_{3/2}) - E(4D_{5/2}) = 1028,5 \pm 2,5 \text{ MHz}$$

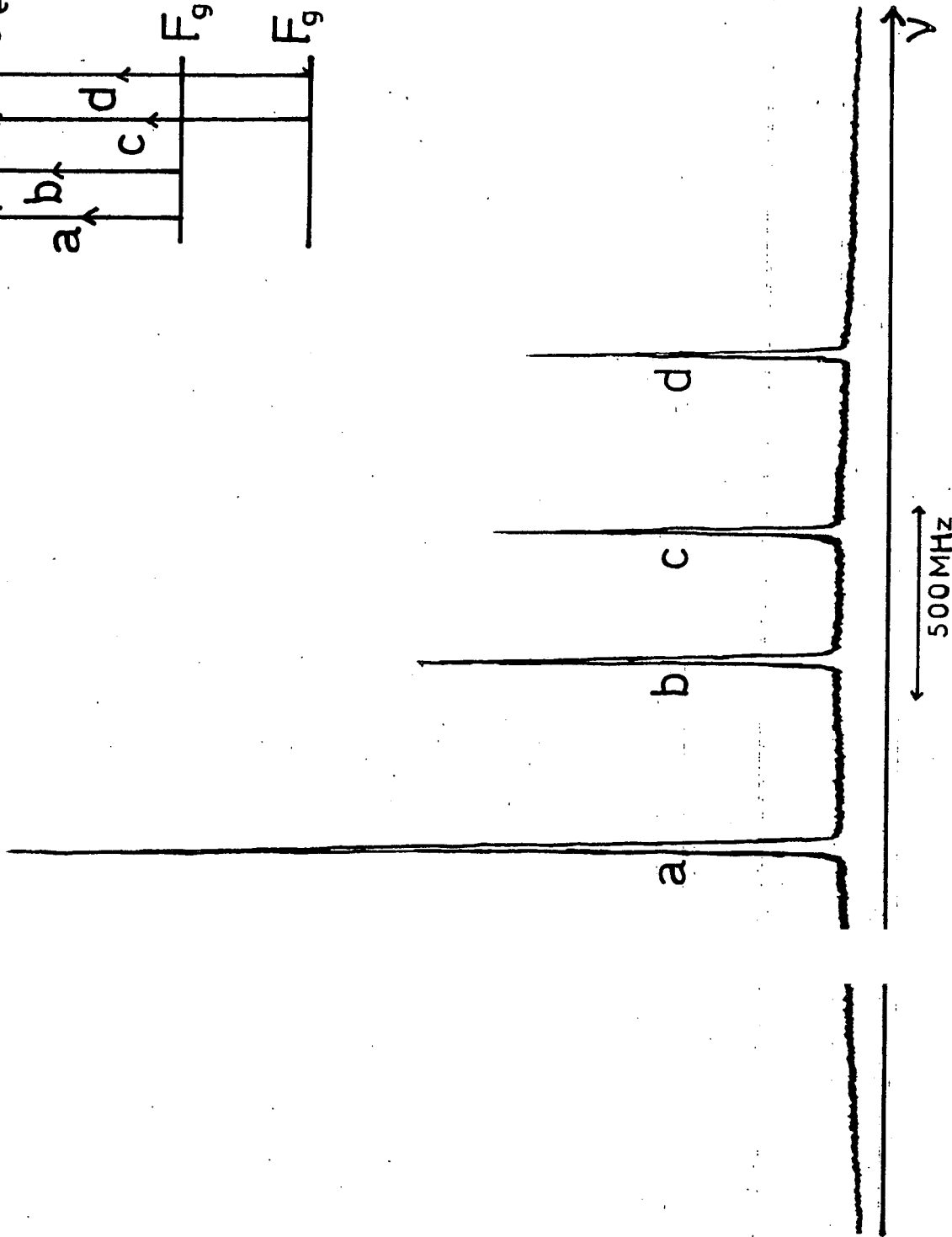
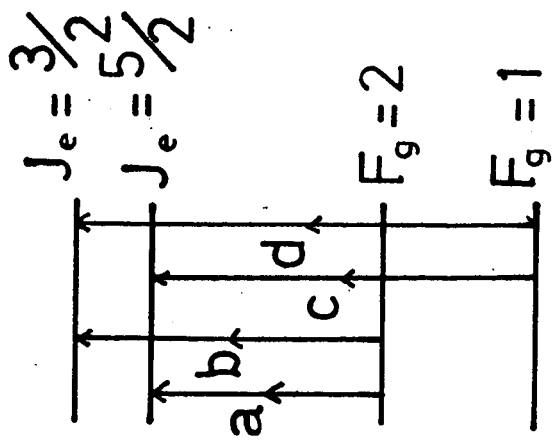
Les précédentes déterminations expérimentales étaient :

$$1038 \pm 50 \text{ MHz} \quad \text{Meissner et Luft} \quad (11)$$

$$1025 \pm 6 \text{ MHz} \quad \text{Pritchard et coll.} \quad (1)$$

Figure II-1

Transition $3S \rightarrow 4D$



| | |
|---------------|------------------------|
| 1035 ± 10 MHz | Hansch et coll. (4) |
| 1027 ± 16 MHz | Bjorkholm et Liao (12) |

Depuis FREDRIKSSON et SVANBERG (13) ont fait une mesure plus précise en utilisant une méthode de croisements de niveaux. Ils ont obtenu :

$$1028,3 \pm 0,6 \text{ MHz}$$

Cette valeur est en très bon accord avec notre mesure.

3°/ Transition à deux photons entre les niveaux 3S et 5S du sodium

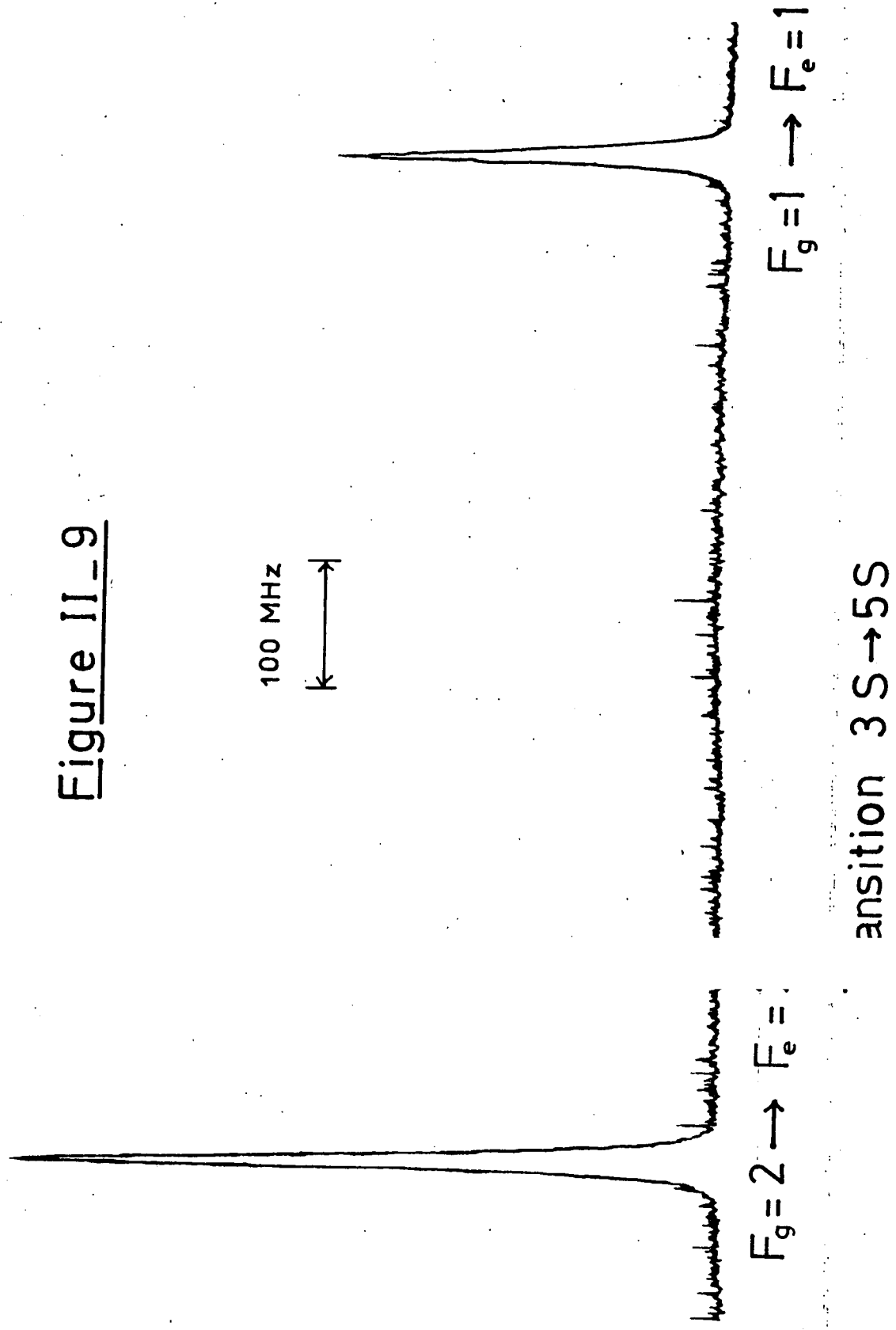
La structure hyperfine de l'état $5S_{1/2}$ du sodium n'est pas négligeable. Lorsque nous avons commencé ces expériences aucune mesure n'en avait été faite. Cependant un calcul semi empirique permet de l'estimer à 152 MHz environ (15). Dans le cas d'une transition entre deux niveaux S il y a des règles de sélection très simple.

Supposons que l'atome soit dans un état de couplage L S. L'opérateur transition à deux photons n'agissant que sur les variables orbitales, seule la partie scalaire de cet opérateur pourra coupler deux états de moment cinétique orbital nul. On a donc :

$$\Delta F = 0 \quad \text{et} \quad \Delta m_F = 0 \quad (\text{II-2})$$

Physiquement cela se comprend facilement. Dans un état S la structure hyperfine est due au couplage entre le spin de l'électron S et le spin du noyau I. A l'approximation dipolaire électrique il n'y a aucune interaction entre les spins électronique et nucléaire S et I et la lumière incidente. Lorsqu'on absorbe deux photons le couplage entre S et I ne change donc pas et on garde le même moment cinétique F. Le spectre d'absorption à deux photons est donc formé de deux raies qui correspondent aux transitions $F_g = 1 \rightarrow F_e = 1$ et $F_g = 2 \rightarrow F_e = 2$. C'est ce que nous observons expérimentalement (figure II-9). Le rapport des intensités est égal au rapport des dégénérescences des deux niveaux de structure hyperfine de l'état fondamental, soit 5/3.

Figure II-9



L'écart entre les deux raies est égal à la moitié de la différence entre la structure hyperfine de l'état excité et celle de l'état fondamental. Comme celle-ci est bien connue, on en déduit la structure hyperfine de l'état excité.

$$E(5S_{1/2}, F'=2) - E(5S_{1/2}, F'=1) = 155,3 \pm 1,5 \text{ MHz}$$

Cette mesure est en bon accord avec d'autres déterminations expérimentales :

$$156 \pm 10 \text{ MHz} \quad \text{Levenson et Blöembergen (3)}$$

$$159 \pm 6 \text{ MHz} \quad \text{Duong et coll. (14)}$$

Récemment une mesure plus précise a été faite par une méthode de spectroscopie hertzienne par TSEKERIS et coll. (16) :

$$155,2 \pm 0,4 \text{ MHz}$$

L'accord avec notre mesure est excellent.

4°/ Etude des largeurs de raie

pas d'air

Expérimentalement les raies que nous observons ont une largeur totale à mi-hauteur de 20 MHz environ (nous considérons ici *deux fois* la fréquence du laser). Nous examinons dans ce paragraphe l'ordre de grandeur des diverses causes d'élargissement. Comme nous l'avons vu au premier chapitre (§ I, 4°) l'effet Doppler du second ordre est totalement négligeable. Les principales causes d'élargissement sont donc la largeur naturelle de l'état excité, le temps de traversée du faisceau et la largeur de mode du laser.

Les durées de vie des états 4D et 5S sont respectivement 52 ns et 71 ns (17,18), ce qui correspond à des largeurs de 3,1 MHz et 2,3 MHz. L'élargissement dû au temps de traversée du faisceau est caractérisé par le paramètre δ défini par la formule (I-42) :

$$\delta = \frac{1}{W_0} \left(\frac{2kT}{M} \right)^{1/2}$$

??

δ représente la demi largeur à $\frac{1}{e}$ rapportée à deux photons. Le rayon W_0 du faisceau au point de focalisation se calcule à partir du diamètre du faisceau

au niveau de la lentille de focalisation. Pour un diamètre de 3 mm environ et pour une focale de 200 mm nous obtenons (formule I-27 et I-28) :

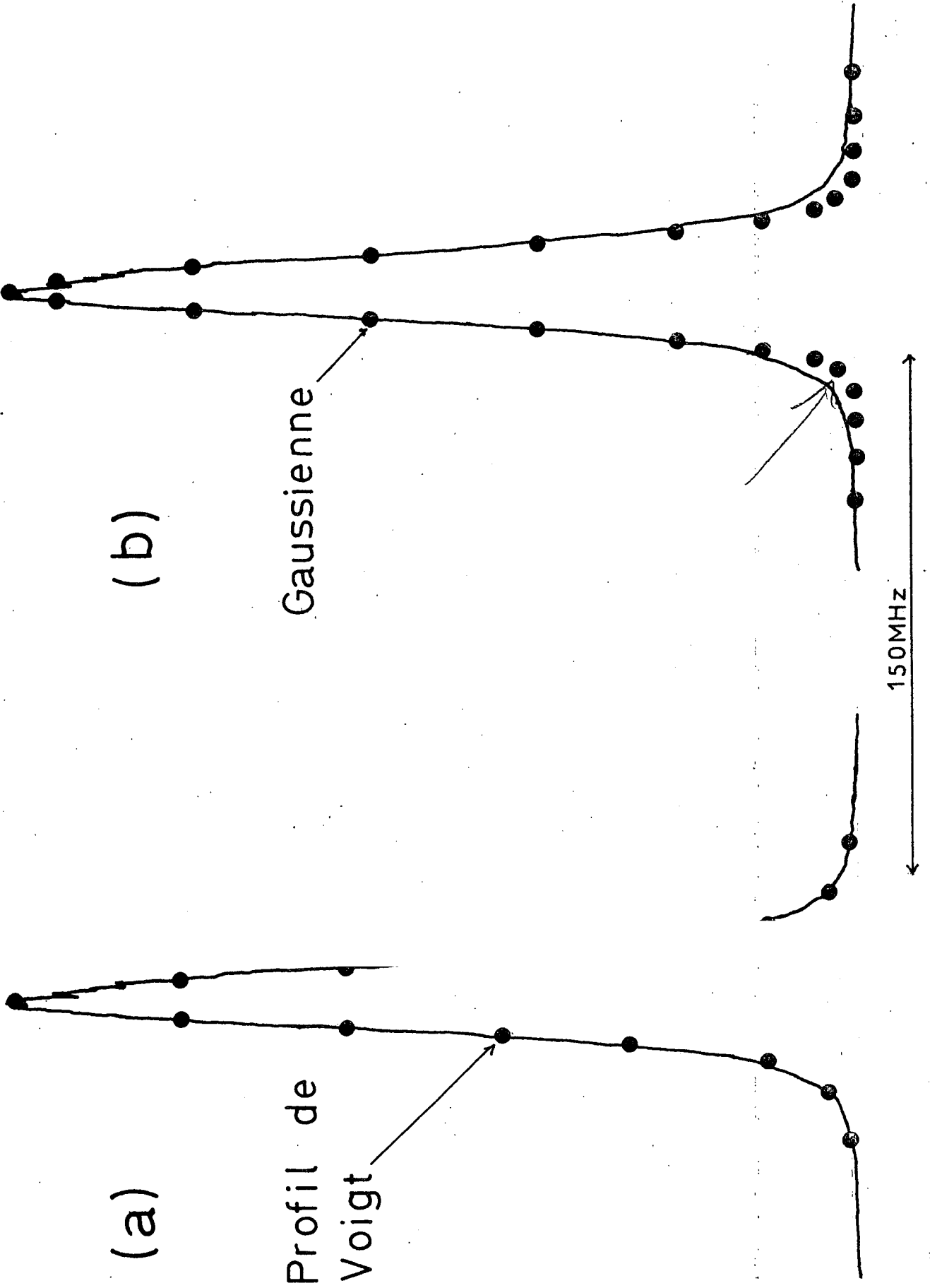
$$W_0 \approx 27 \mu$$

Ce résultat n'a qu'une valeur indicative dans la mesure où l'on ne connaît le diamètre du faisceau que de manière approximative. Pour une température de 290° l'élargissement δ est de 2,6 MHz, ce qui correspond à 4,3 MHz environ de largeur totale à mi-hauteur.

Ces ordres de grandeur montrent clairement que la principale cause d'élargissement est la largeur de mode du laser ("jitter"). Dans ces conditions les formes de raie que nous avons calculées au premier chapitre sont complètement brouillées par le "jitter" du laser. Pour étudier le profil des raies d'absorption à deux photons il est donc nécessaire de connaître la forme du mode du laser. Une bonne approximation est de supposer que ce mode a un profil gaussien. Dans ces conditions, comme nous le montrons dans l'appendice B, la raie d'absorption à deux photons a approximativement un profil de Voigt. La partie lorentzienne du profil de Voigt correspond à la largeur naturelle et éventuellement à un élargissement par collision. La partie gaussienne correspond au "jitter" du laser et à l'élargissement dû au temps de traversée du faisceau.

Sur la figure (II-10) nous avons comparé la forme de la raie d'absorption à un profil de Voigt. Cet exemple correspond à la transition $3S_{1/2} \rightarrow 4D_{5/2}$. Les points théoriques (a) ont été obtenus en faisant le produit de convolution d'une lorentzienne de largeur 6 MHz avec une gaussienne de largeur à mi-hauteur 17 MHz. Les points théoriques (b) correspondent à un profil purement gaussien. Nous constatons que la courbe expérimentale diffère très peu du profil de Voigt. La courbe (b) permet de voir si le profil de Voigt se déforme notablement lorsqu'on change les largeurs relatives de la gaussienne et de la lorentzienne. Nous pouvons ainsi estimer que les largeurs indiquées ci-dessus sont valables à 2 MHz près environ. La partie lorentzienne du profil de Voigt est plus importante que la largeur naturelle de l'état 4D. Ceci semble indiquer qu'il y a un élargissement dû aux collisions de l'ordre de 3 MHz. D'autre part, si nous soustrayons de la largeur de la gaussienne (17 MHz) l'estimation théorique que nous avons faite de l'élargissement dû au temps de traversée du

Figure II_10



faisceau (4,3 MHz), nous trouvons que l'élargissement dû au "jitter" du laser est d'environ 16 MHz. Comme nous avons raisonné sur deux fois la fréquence du laser, nous en déduisons que le "jitter" du laser est de l'ordre de 8 MHz.

En conclusion nous pouvons dire que les raies d'absorption à deux photons que nous observons sont bien représentées par un profil de Voigt. L'ordre de grandeur des diverses causes d'élargissement est le suivant :

- largeur naturelle : 3,1 MHz pour l'état 4D et 2,3MHz pour l'état 5S
- élargissement par collisions : 3 MHz environ
- élargissement dû au temps de traversée du faisceau : 4 MHz
- élargissement dû au "jitter" du laser : 16 MHz.

Nous voyons que la principale cause d'élargissement est d'origine instrumentale. C'est ce qui explique que la largeur des raies que nous observons est assez peu reproductible et varie entre 17 MHz et 23 MHz environ.

III - EXPERIENCES D'ABSORPTION A DEUX PHOTONS SUR L'ATOME DE NEON

Avant de présenter les expériences que nous avons faites nous allons rappeler les règles de couplage et la terminologie utilisée pour l'atome de néon.

1°/ Le couplage de Racah dans l'atome de néon

Considérons un niveau excité d'une configuration $2p^5 n l$. L'atome possède alors un électron extérieur nl et un trou $2p$ dans le coeur. Pour une configuration assez excitée ($n \geq 4$) l'ordre de grandeur des divers termes du hamiltonien est le suivant :

$$H^{SO}(\text{coeur}) \gg H_{elec}^D(\text{coeur, \u00e9lectron externe}) \gg H_{elec}^E(\text{coeur, \u00e9lectron externe}) \text{ et } H^{SO}(\u00e9lectron)$$

L'interaction spin-orbite du coeur H^{SO} (coeur) est beaucoup plus grande que la partie directe de l'interaction électrostatique entre le trou et l'électron (H_{elec}^D (coeur, électron externe)) et cette dernière est elle-même beaucoup plus grande que l'interaction spin-orbite de l'électron externe H^{SO} (électron) et que le terme d'échange de l'interaction électrostatique H_{elec}^E (coeur, électron externe). Les règles de couplage apparaissent alors simplement. Si on ne tient compte d'aucune interaction les moments cinétiques orbitaux $\vec{\ell}_1$ et $\vec{\ell}_2$ du trou et de l'électron et leurs spins \vec{s}_1 et \vec{s}_2 sont de bons nombres quantiques. Si on tient compte de l'interaction spin-orbite du coeur seul le moment cinétique total du coeur est un bon nombre quantique :

$$\vec{j}_1 = \vec{\ell}_1 + \vec{s}_1$$

Comme nous avons $\ell_1 = 1$ et $s_1 = \frac{1}{2}$, j_1 peut valoir $\frac{1}{2}$ ou $\frac{3}{2}$. Les niveaux pour lesquels $j_1 = \frac{1}{2}$ sont notés avec un prime. L'interaction spin-orbite du coeur est très forte. Par exemple pour la configuration $2p^5 4d$ l'écart entre les sous-configurations $4d$ et $4d'$ est de 700 cm^{-1} environ. De plus cette structure fine est inversée car elle est due en fait à un trou et non à un électron.

Si on prend en compte maintenant le terme direct de l'interaction électrostatique entre le coeur et l'électron H_{elec}^D , nous devons coupler \vec{j}_1 avec le moment cinétique orbital $\vec{\ell}_2$ de l'électron externe. Nous posons alors :

$$\vec{K} = \vec{j}_1 + \vec{\ell}_2$$

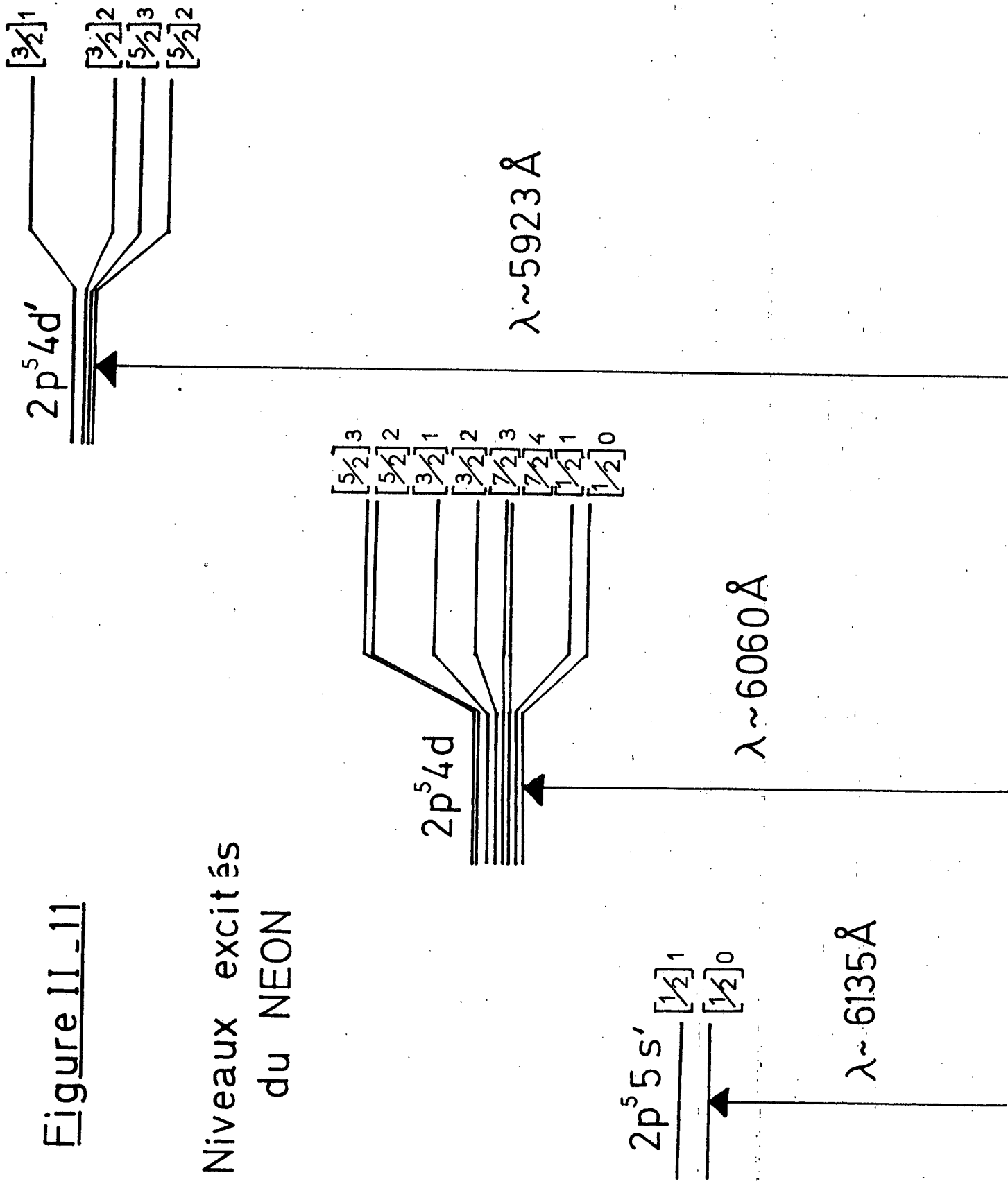
\vec{K} commute avec H^{SO} (coeur) et H_{elec}^D : c'est donc un bon nombre quantique. Par contre \vec{j}_1 ne reste un bon nombre quantique que si H^{SO} (coeur) $\gg H_{elec}^D$.

X Ceci n'est vrai que pour les configurations très excitées. C'est par contre faux pour la configuration $2p^5 3p$.

Si on considère maintenant tous les termes du hamiltonien seul le moment cinétique totale $\vec{J} = \vec{K} + \vec{s}_2$ commute avec le hamiltonien. Par la suite nous noterons les états de la configuration $nl[K]J$ si $j_1 = \frac{3}{2}$ et $nl'[K]J$ si $j_1 = \frac{1}{2}$.

Figure II.11

Niveaux excités
du NEON



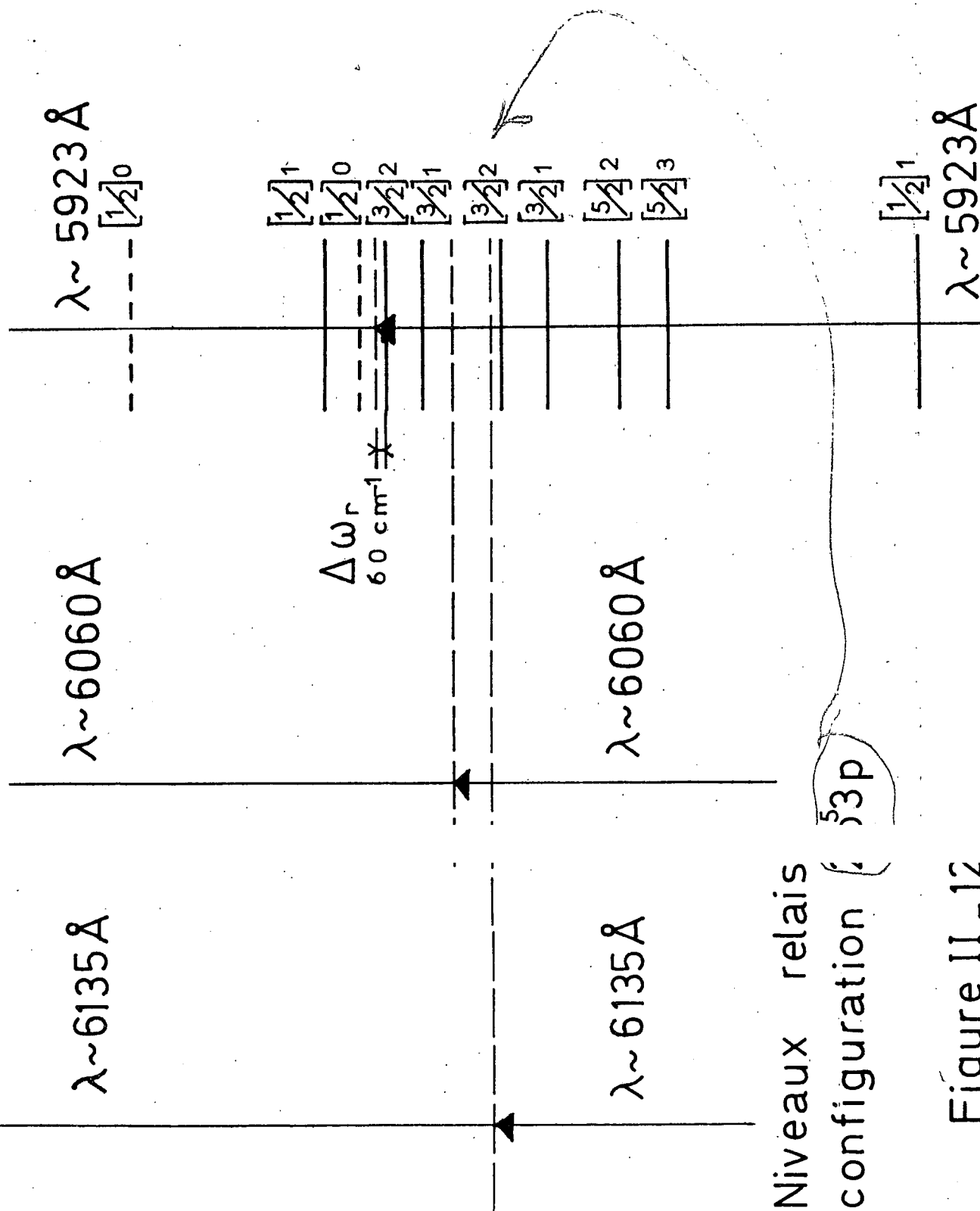


Figure II -12

2°/ Intensités théoriques des transitions à deux photons dans l'atome de néon

Nous avons observé plusieurs transitions à deux photons à partir de l'état métastable $3s[3/2]2$ vers la configuration $2p^5 4d$ et la sous configuration $2p^5 5s'$. La figure (II-11) donne un schéma des niveaux de ces configurations. Pour ces transitions les niveaux relais prépondérants sont les niveaux $2p^5 3p$ (figure II-12). Les longueurs d'onde d'excitation sont environ les suivantes :

| | |
|--------------------------|------------------------------------|
| Sous-configuration $4d'$ | $\lambda \approx 5923 \text{ \AA}$ |
| Sous-configuration $4d$ | $\lambda \approx 6060 \text{ \AA}$ |
| Sous-configuration $5s'$ | $\lambda \approx 6135 \text{ \AA}$ |

Nous avons représenté sur la figure (II-12) l'énergie de l'atome dans l'état virtuel intermédiaire (énergie de l'atome dans l'état métastable + énergie d'un photon).

Nous voyons que dans chacun des cas considérés le défaut d'énergie $\Delta\omega_r$ est assez petit. Par exemple dans le cas des transitions vers les niveaux $4d'$ le plus petit des écarts $\hbar\Delta\omega_r$ est de 60 cm^{-1} , soit environ cinq fois moins que pour les transitions étudiées dans l'atome de sodium. C'est ce qui permet d'avoir une probabilité de transition assez importante.

L'intensité des résonances à deux photons se calcule facilement à partir de la formule (I-4). Nous avons :

$$\bar{\Gamma}_g = \frac{4n_1 n_2 \omega^2}{\epsilon_0^2 \Gamma_e} \times \frac{1}{2J_g + 1} \times \sum_{m_e m_g} |\langle eJ_{e m_e} | Q_{\epsilon_1 \epsilon_2}^S | gJ_{g m_g} \rangle|^2 \quad (\text{II-2})$$

Nous utilisons la notation $\bar{\Gamma}_g$ pour indiquer que nous avons moyenné sur les sous-niveaux Zeemann. En utilisant le développement (I-13) nous obtenons :

$$\bar{\Gamma}_g = \frac{4n_1 n_2 \omega^2}{\epsilon_0^2 \Gamma_e} \times \frac{1}{2J_g + 1} \sum_{k=0,2} \frac{|\langle eJ_e || Q^k || gJ_g \rangle|^2}{2k + 1} \sum_q |a_q^k|^2 \quad (\text{II-3})$$

Nous avons ainsi fait apparaître la partie scalaire Q^0 et la partie quadripolaire Q^2 de l'opérateur transition à deux photons. Les coefficients a_q^k

dépendent des polarisations utilisées. Pour une polarisation linéaire nous avons (Chapitre I - Tableau I) :

$$|a_o^o|^2 = \frac{1}{3} \quad \sum_q |a_q^2|^2 = \frac{2}{3}$$

Dans l'atome de néon le niveau initial g a pour moment cinétique $J_g = 2$. Pour les transitions vers un niveau excité de moment cinétique $J_e = 2$ nous avons à la fois la partie scalaire et la partie quadripolaire non nulles. Dans les autres cas ($\Delta J \neq 0$) seule la partie quadripolaire est non nulle.

Dans l'atome de néon le calcul des éléments de matrice réduit $\langle eJ_e || Q^k || gJ_g \rangle$ est assez long. Il faut en effet tenir compte explicitement de chacun des niveaux relais et des fonctions d'onde des états de la configuration $2p^5 3p$. GRYNBERG a fait le calcul pour les transitions à deux photons qui aboutissent au niveau $4d'$ (8). Nous avons repris le formalisme qu'il a utilisé et nous l'avons appliqué aux transitions qui aboutissent aux niveaux $4d$ et $5s'$. Pour alléger l'exposé nous donnons seulement ici le résultat obtenu.

Nous écrivons la probabilité de transition $\bar{\Gamma}_g$ dans le cas d'une polarisation linéaire en faisant apparaître le dipole électrique \vec{d} relatif à l'électron externe. Nous définissons alors les éléments de matrice q^k :

$$\langle e || q^k || g \rangle = \frac{\langle e ; j_e [K_e] J_e || Q^k || g ; j_g [K_g] J_g \rangle}{\sqrt{2k+1} \langle e || \vec{d} || 3p \rangle \langle 3p || \vec{d} || g \rangle} \quad (\text{II-4})$$

La probabilité de transition $\bar{\Gamma}_g$ s'écrit alors :

$$\bar{\Gamma}_g = \frac{4n_1 n_2 \omega^2}{\epsilon_o^2 \Gamma_e} \times \frac{|\langle e || \vec{d} || 3p \rangle \langle 3p || \vec{d} || g \rangle|^2}{2J_g + 1} \times \left\{ \frac{1}{3} |\langle e || q^0 || g \rangle|^2 + \frac{2}{3} |\langle e || q^2 || g \rangle|^2 \right\} \quad (\text{II-5})$$

Le tableau I donne les valeurs obtenues pour les coefficients $\langle e || q^k || g \rangle$ pour les divers niveaux excités que nous considérons (l'unité est le cm^2).

| Niveau excité | $ \langle e q^0 g \rangle ^2$ | $ \langle e q^2 g \rangle ^2$ | $\frac{1}{3} \langle e q^0 g \rangle ^2 + \frac{2}{3} \langle e q^2 g \rangle ^2$ |
|---------------|-------------------------------------|-------------------------------------|---|
| 4d' [3/2]1 | 0 | 22×10^{-8} | $14,6 \times 10^{-8}$ |
| 4d' [3/2]2 | $0,1 \times 10^{-8}$ | 80×10^{-8} | 53×10^{-8} |
| 4d' [5/2]3 | 0 | 218×10^{-8} | 145×10^{-8} |
| 4d' [5/2]2 | 14×10^{-8} | 28×10^{-8} | $23,4 \times 10^{-8}$ |
| 4d [1/2]0 | 0 | 2×10^{-11} | $1,3 \times 10^{-11}$ |
| 4d [1/2]1 | 0 | $0,69 \times 10^{-8}$ | $0,45 \times 10^{-8}$ |
| 4d [3/2]1 | 0 | $0,44 \times 10^{-8}$ | $0,30 \times 10^{-8}$ |
| 4d [3/2]2 | $29,4 \times 10^{-8}$ | $13,5 \times 10^{-8}$ | $18,8 \times 10^{-8}$ |
| 4d [5/2]2 | 8×10^{-11} | $0,6 \times 10^{-8}$ | $0,4 \times 10^{-8}$ |
| 4d [5/2]3 | 0 | 38×10^{-8} | 25×10^{-8} |
| 4d [7/2]3 | 0 | $1,8 \times 10^{-8}$ | $1,2 \times 10^{-8}$ |
| 4d [7/2]4 | 0 | $0,45 \times 10^{-8}$ | $0,30 \times 10^{-8}$ |
| 5s' [1/2]0 | 0 | 16×10^{-8} | $10,6 \times 10^{-8}$ |
| 5s' [1/2]1 | 0 | 175×10^{-8} | 116×10^{-8} |

Dans ces calculs nous avons supposé que les niveaux excités étaient des états de Racah pur

Comme nous le voyons dans ce tableau les intensités relatives de ces transitions peuvent varier couramment d'un facteur mille, mis à part le

cas de la transition aboutissant au niveau $4d[1/2] J = 0$ qui est très peu intense. Les cas les plus favorables semblent être les niveaux des sous-configurations $(4d')$ et $(5s')$. Cependant la puissance du laser est bien meilleure à 5923 \AA (140 mWatt environ) qu'à 6135 \AA (40 mWatt). C'est pour cette raison que nous avons cherché à exciter d'abord les niveaux de la sous-configuration $(4d')$.

3°/ Transition à deux photons vers les niveaux $4d'$

Le montage expérimental est à peu près celui de la figure (II-6). La seule différence est que nous devons faire une décharge dans la cellule à néon pour peupler l'état métastable. Nous utilisons pour cela un générateur H.F. à 14 MHz environ. Pour ne pas être ébloui par la lumière de la décharge nous travaillons en post-décharge. Nous hachons la décharge à 2 kHz environ et un circuit Analog Devices SHA 1A permet de transmettre le signal du photomultiplicateur uniquement pendant la post-décharge.

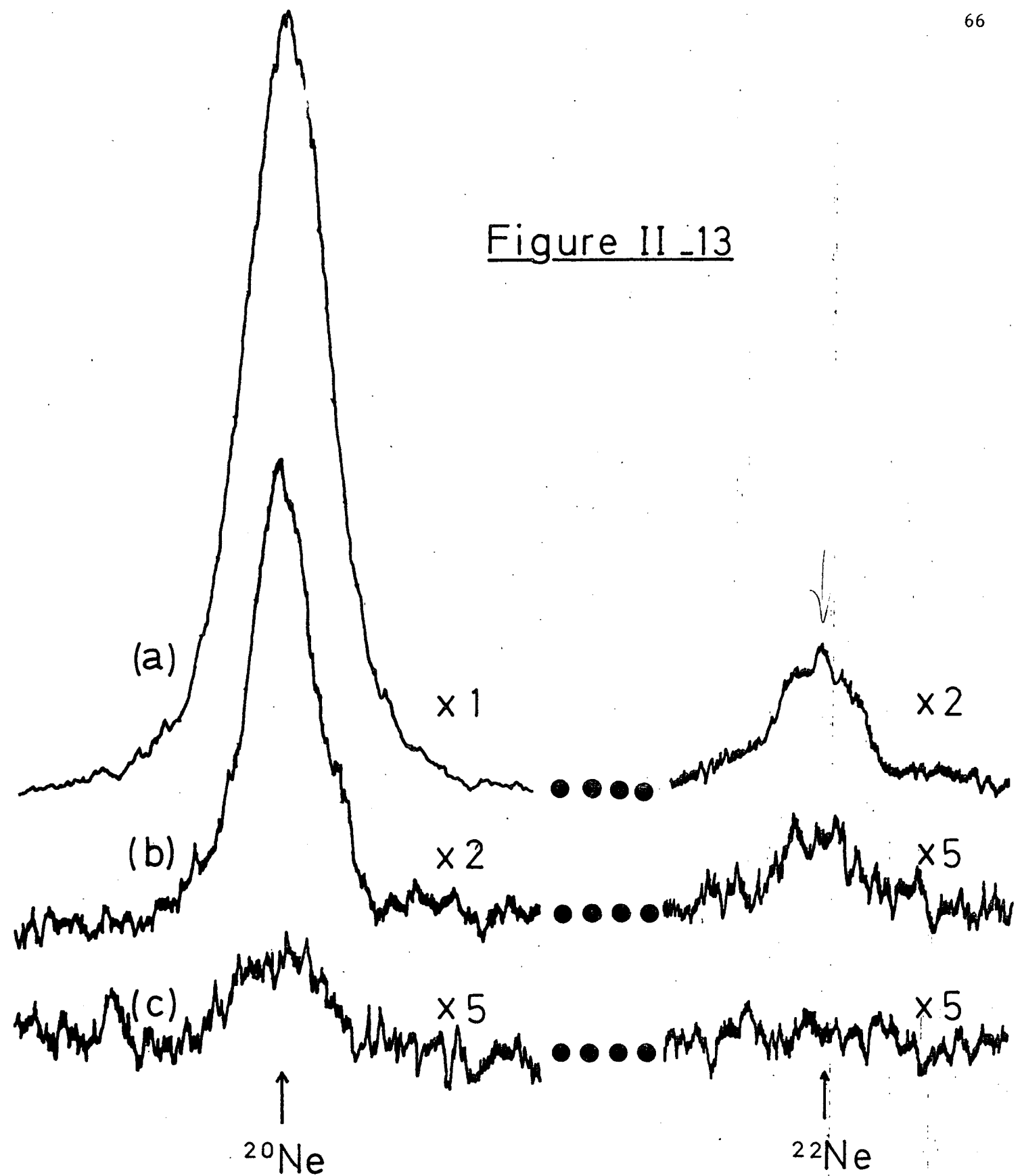
Nous avons utilisé des cellules de néon dont la pression variait de $0,2 \text{ torr}$ à 2 torr . Le seul effet notable est l'élargissement des raies observées. Il semble que le rapport signal sur bruit soit le meilleur pour une pression de $0,6 \text{ torr}$. En comparant l'intensité du signal à deux photons que nous observons sur le néon à celui du sodium nous estimons que nous avons environ 10^{11} à 10^{12} métastables par cm^3 . Ceci est à comparer à la densité d'atomes qui est de l'ordre de 10^{16} atomes par cm^3 : nous avons donc entre un atome sur dix mille et un atome sur cent mille dans l'état métastable.

Comme pour le sodium, nous détectons l'absorption à deux photons en regardant la fluorescence à partir de l'état excité. Nous avons choisi les fluorescences suivantes :

| | |
|-----------------------------------|--------------------------------|
| $4d'[3/2]1 \rightarrow 3p'[1/2]1$ | $\lambda_F = 5961 \text{ \AA}$ |
| $4d'[3/2]2 \rightarrow 3p'[1/2]1$ | $\lambda_F = 5965 \text{ \AA}$ |
| $4d'[5/2]2 \rightarrow 3p'[3/2]2$ | $\lambda_F = 5872 \text{ \AA}$ |
| $4d'[5/2]3 \rightarrow 3p'[3/2]1$ | $\lambda_F = 5902 \text{ \AA}$ |

La figure (II-13) représente les courbes que nous obtenons lorsqu'on excite les niveaux $4d'[5/2]3$, $4d'[3/2]2$ et $4d'[3/2]1$. La cellule contient du

Figure II_13



- (a) Transition $2p^5 3s [3/2]_2 \rightarrow 2p^5 4d' [5/2]_3$
- (b) Transition $2p^5 3s [3/2]_2 \rightarrow 2p^5 4d' [3/2]_2$
- (c) Transition $2p^5 3s [3/2]_2 \rightarrow 2p^5 4d' [3/2]_1$

néon naturel (90 % de ^{20}Ne et 10 % de ^{22}Ne) et nous observons le déplacement isotopique $^{20}\text{Ne} - ^{22}\text{Ne}$. Nous voyons que le rapport signal sur bruit est excellent dans le cas de la transition vers le niveau $4d'[5/2] J = 3$. Au maximum du signal le photomultiplicateur détecte environ 10^5 photons par seconde.

Par contre le rapport signal sur bruit se dégrade lorsqu'on considère les transitions aboutissant aux niveaux $4d'[3/2]2$ et $4d'[3/2]1$ (le signal de la transition aboutissant au niveau $4d'[5/2]2$ qui n'est pas représenté sur la figure (II-13) est analogue à celui de la transition vers le niveau $4d'[5/2]2$). Dans le cas de la transition aboutissant au niveau $4d'[3/2]1$ il n'est plus possible d'observer la raie correspondant à l'isotope 22 et celle correspondant à l'isotope 20 sort à peine du bruit.

Remarquons que l'intensité de la transition qui aboutit au niveau $4d'[3/2]1$ est près de cinquante fois plus petite que l'intensité de celle qui aboutit au niveau $4d'[5/2]3$, alors que la théorie (tableau I) prévoit seulement un rapport dix pour les intensités en absorption. En fait la détection pour le niveau $4d'[3/2]1$ est très défavorable. D'une part ce niveau est directement relié par le hamiltonien dipolaire électrique à l'état fondamental $2p^6$: il peut donc se désexciter en émettant un photon U.V. que nous ne pouvons pas détecter. Nous ne connaissons pas le rapport de branchement mais il est possible qu'il soit assez important. D'autre part nous n'avons pas pu utiliser la fluorescence visible la plus intense à 5918,9 Å, car elle était trop proche de la longueur d'onde d'excitation 5921,5 Å et l'on aurait été ébloui par la lumière parasite du laser.

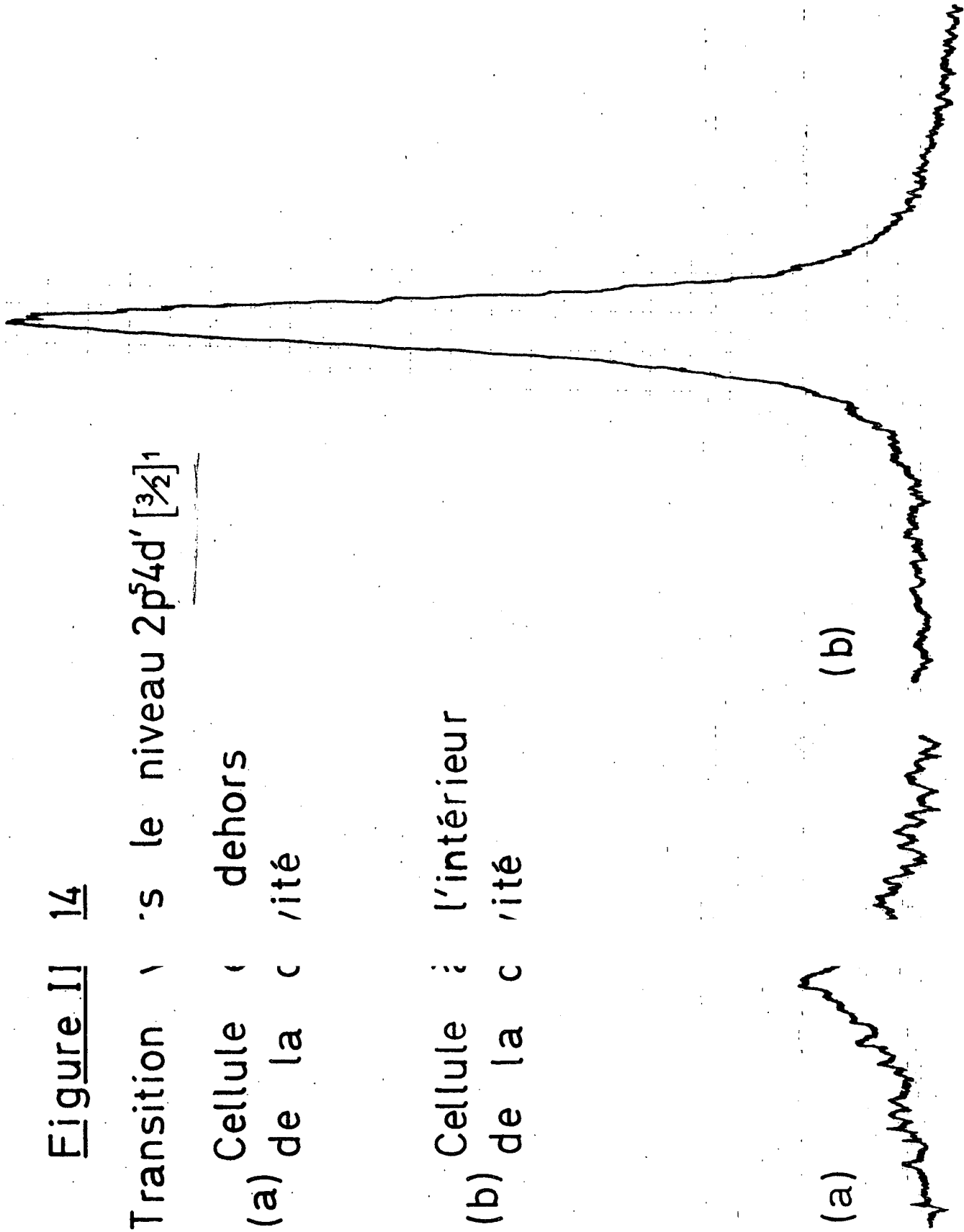
En comparant les signaux observés (figure II-13) et les intensités relatives théoriques (Tableau I) il apparaît clairement qu'il était très difficile d'étudier les niveaux des sous-configurations $4d$ et $5s'$. Ceci est d'autant plus net que la puissance du laser est plus faible : 80 mWatt à 6060 Å (longueur d'onde moyenne d'excitation pour les niveaux $4d$) et 40mWatt à 6135 Å (longueur d'onde d'excitation des niveaux $5s'$). C'est pourquoi nous avons mis au point une nouvelle technique qui nous a permis de gagner un facteur notable.

Figure II 14

Transition vers le niveau $2p^5 4d' [^3\frac{3}{2}]'$

Cellule (a) de la cité dehors

Cellule (b) de la cité à l'intérieur



4°/ Utilisation d'une cavité résonnante

Pour augmenter le signal nous avons placé la cellule d'expérience à l'intérieur d'une cavité Pérot-Fabry. La longueur de cette cavité est asservie de manière à être toujours résonnante avec la longueur d'onde du laser. A l'intérieur d'une telle cavité l'intensité de l'onde stationnaire est beaucoup plus importante que l'intensité incidente. Par exemple, si le Pérot-Fabry est formé d'un miroir totalement réfléchissant et d'un miroir de coefficient de transmission T , l'intensité à l'intérieur de la cavité résonnante est $4/T$ fois l'intensité incidente. La probabilité d'absorption à deux photons varie de manière quadratique avec la puissance lumineuse et il est donc possible ainsi d'améliorer le signal d'une manière considérable : pour un coefficient de transmission de 10% le gain doit être par exemple de 1600 si il n'y a aucune perte.

Le gain que nous avons obtenu est en fait plus modeste. La figure (II,14) représente le signal obtenu pour la transition vers le niveau $4d' [\frac{3}{2}]$ selon que la cellule est placée ou non dans la cavité résonnante. Le signal est amélioré par un facteur 80 environ. Malheureusement le bruit a aussi augmenté d'un facteur deux à trois. Le gain sur le rapport signal sur bruit est donc environ de 30. C'est bien ce que l'on observe sur la figure (II-14).

Le schéma du Pérot-Fabry que nous avons utilisé est représenté sur la figure (II-15). La cavité est formée de deux miroirs concentriques de manière à ce que l'onde stationnaire soit focalisée au centre. Le miroir de sortie est porté par une céramique piézo-électrique. Pour l'asservissement nous modulons la longueur du Pérot Fabry. Nous détectons la modulation de l'intensité transmise à l'aide d'une détection synchrone qui fournit le signal d'erreur. Pour diminuer les pertes de la cavité nous utilisons une cellule d'expérience à faces de Brewster. La lumière incidente doit donc être polarisée linéairement. Les faces des cellules sont assez minces (2 mm) de manière à diminuer l'astigmatisme.

La seule difficulté est d'adapter le faisceau gaussien défini par le laser au faisceau gaussien défini par les miroirs de la cavité résonnante. Nous utilisons pour cela une lentille L qui focalise le faisceau au milieu de la cavité. Cette lentille est placée de manière telle que le rayon de courbure du faisceau (formule I-28) au niveau de chacun des miroirs de la cavité est exactement égal au rayon de courbure des miroirs. Dans ces conditions toute l'énergie incidente sert à exciter le mode fondamental de la cavité résonnante et non les modes transverses.

Actuellement nous utilisons un miroir d'entrée ayant un coefficient de réflexion de 94 % et un rayon de courbure de 250 mm et un miroir de sortie ayant un coefficient de réflexion de 99,5 % et 30 mm de rayon. Nous avons choisi ces caractéristiques uniquement parce que nous avons ces miroirs à notre disposition. En fait ces coefficients de réflexion sont assez bien adaptés. Nous avons pu évaluer que les pertes en un aller retour (sans compter la transmission du miroir d'entrée) sont de l'ordre de 4 à 5%. On montre alors facilement que le coefficient de réflexion optimum pour le miroir d'entrée est 95 %. Par contre le rayon de courbure du miroir d'entrée (250 mm) est trop grand. D'une part nous ne pouvons pas focaliser assez le faisceau. Dans les conditions où nous travaillons le rayon w_0 du faisceau au point de striction est de 40 μ environ, alors qu'il était de 27 μ dans le montage précédent. D'autre part le Pérot Fabry est trop long et la largeur d'un mode est d'environ 15 MHz. La largeur du mode du laser (8 MHz) et la largeur du mode du Pérot-Fabry sont donc comparables. Dans ces conditions l'asservissement du Pérot-Fabry sur la longueur d'onde du laser ne fonctionne pas très bien. C'est pour ces raisons que nous pensons reconstruire ce Pérot-Fabry avec un miroir de 75 mm de rayon de courbure : la largeur d'un mode du Pérot-Fabry sera alors de 50 MHz environ et nous pourrons utiliser une lentille de plus courte focale. (Nous pensons gagner ainsi un facteur de l'ordre de cinq que le signal).

5°/ Transitions à deux photons vers les niveaux $2p^5 4d$ et $2p^5 5s'$.

Grâce à cette amélioration nous avons observé plusieurs transitions aboutissant à des états des sous-configurations $2p^5 4d$ et $2p^5 5s'$. Nous en donnons ci-dessous la liste. Nous indiquons aussi la longueur d'onde d'excitation à deux photons λ_E et la longueur d'onde de fluorescence λ_F que nous avons choisies pour la détection.

| | | | |
|---|----------------------------------|----------------------------------|-----|
| $3s [^3/2] 2 \rightarrow 4d [^3/2] 2$ ✕ | $\lambda_E = 6064,5 \text{ \AA}$ | $\lambda_F = 5330,8 \text{ \AA}$ | (a) |
| $3s [^3/2] 2 \rightarrow 4d [^5/2] 3$ ✕ | $\lambda_E = 6057,7 \text{ \AA}$ | $\lambda_F = 5748,3 \text{ \AA}$ | (b) |
| $3s [^3/2] 2 \rightarrow 4d [^7/2] 3$ | $\lambda_E = 6066,4 \text{ \AA}$ | $\lambda_F = 5820,2 \text{ \AA}$ | (c) |
| $3s [^3/2] 2 \rightarrow 5s' [^1/2] 0$ | $\lambda_E = 6140,0 \text{ \AA}$ | $\lambda_F = 6313,7 \text{ \AA}$ | (d) |
| $3s [^3/2] 2 \rightarrow 5s' [^1/2] 1$ | $\lambda_E = 6130,5 \text{ \AA}$ | $\lambda_F = 6328,2 \text{ \AA}$ | (e) |

Le signal que nous observons pour les transitions (a), (b) et (e) est du même ordre de grandeur que celui de la transition qui aboutit au niveau $4d' [^3/2] 1$ (figure II-14). Les intensités des transitions (c) et (d) sont par contre 5 et 10 fois plus petites environ.

Nous avons observé pour l'ensemble de ces transitions le déplacement isotopique ^{20}Ne - ^{22}Ne . De plus, en utilisant une cellule contenant l'isotope 21, nous avons étudié la structure hyperfine des niveaux $4d [^3/2] 2$ et $4d [^5/2] 3$ (transitions (a) et (b)). Il s'agit pour l'instant de résultats préliminaires qui doivent être prolongés par l'étude de tous les autres niveaux des configurations $4d$ et $5s$. Nous n'en parlerons donc pas ici et l'ensemble des résultats sera présenté dans la thèse de troisième cycle de K. Béroff.

Nous avons aussi mesuré les écarts d'énergie entre les niveaux d'une même sous-configuration ("structure fine"). Ces résultats présentent plus d'intérêt d'un point de vue expérimental que d'un point de vue théorique, car on ne sait pas calculer avec assez de précision ces structures dans un atome aussi compliqué que le néon. C'est pourquoi nous les présentons maintenant.

6°/ Mesure des structures fines des sous-configurations $2p^{54d}$, $2p^{44d}$ et $2p^{55s}$.

Ces expériences nous ont permis d'une part d'étalonner le Pérot-Fabry de 3 cm (PF2) qui sert à l'asservissement en fréquence et, d'autre part, de mesurer les structures fines des sous-configurations $2p^{54d}$, $2p^{54d'}$ et $2p^{55s}$. L'idée générale est la suivante : les longueurs d'onde des transitions à deux photons que nous avons observées se répartissent en trois groupes au voisinage de 5923 Å , 6060 Å et 6135 Å :

$$\begin{array}{l} 5921,5 \overset{\circ}{\text{Å}} , 5923,4 \overset{\circ}{\text{Å}} , 5923,6 \overset{\circ}{\text{Å}} , 5923,8 \overset{\circ}{\text{Å}} \\ 6057,7 \overset{\circ}{\text{Å}} , 6064,5 \overset{\circ}{\text{Å}} \\ 6130,5 \overset{\circ}{\text{Å}} , 6140,0 \overset{\circ}{\text{Å}} \end{array}$$

Nous avons d'abord supposé connues ces longueurs d'onde d'après les tables de longueurs d'onde. En comptant le nombre d'intervalles entre ordres du Pérot Fabry de 3 cm (PF2) entre les longueurs d'onde extrêmes (5921 Å et 6140 Å), nous pouvons en déduire une mesure de cet intervalle entre ordre. La mesure est d'autant plus précise que l'écart $\Delta\lambda$ entre ces longueurs d'onde est grand. Ensuite, connaissant l'intervalle entre ordres, nous pouvons calculer les différences de longueurs d'onde $\delta\lambda$ à l'intérieur de chacun des trois groupes. Sur ces écarts $\delta\lambda$ nous améliorons alors la précision des tables dans le rapport $\delta\lambda/\Delta\lambda$. Ce rapport varie dans notre cas entre $1/20$ et $1/100$. Les écarts $\delta\lambda$ correspondent en fait aux "structures fines" à l'intérieur de chacune des sous-configurations $2p^{54d}$, $2p^{54d'}$ et $2p^{55s}$.

Pour compter le nombre d'intervalles entre ordres du Pérot-Fabry de 3 cm (PF2) nous avons mesuré les excédents fractionnaires des longueurs d'onde d'excitation à deux photons pour l'ensemble des transitions (excepté pour la transition vers le niveau $4d[7/2]3$ que nous n'avions pas encore observée lorsque nous avons fait cette série de mesures). Pour cela, le laser étant asservi, nous balayons la pression dans le Pérot-Fabry à partir du vide. En comptant le nombre d'intervalles entre ordres du Pérot-Fabry de 50 cm (PF4) entre la fréquence à pression nulle et la fréquence de résonance à

deux photons nous connaissons avec une très bonne précision l'excédent fractionnaire par rapport au Pérôt-Fabry de 3 cm. La reproductibilité d'une telle mesure est supérieure à $2 \cdot 10^{-3}$ intervalle entre ordres du P.F.2, ce qui correspond à une erreur en fréquence inférieure à 10 MHz.

Nous avons analysé ces résultats en deux étapes. Dans un premier temps nous considérons que les longueurs d'onde d'excitation sont connues, d'après les tables, et nous en déduisons une mesure de l'intervalle entre ordres du Pérôt-Fabry de 3 cm. Pour calculer les longueurs d'onde d'excitation nous avons utilisé les tables de longueurs d'onde de STRIGANOV (19). Pour chaque transition nous calculons la longueur d'onde en considérant l'excitation par échelon suivante : niveau métastable \rightarrow niveau relai \rightarrow niveau excité. En prenant en compte les divers niveaux intermédiaires possibles nous obtenons plusieurs valeurs pour la même longueur d'onde d'excitation. La dispersion des résultats peut aller jusqu'à $5 \cdot 10^{-4}$ Å (précision de 10^{-7}), ce qui donne une indication sur la précision des tables de longueurs d'onde. Notons que l'incertitude sur les fréquences d'excitation (40 MHz environ) est plus grande que l'incertitude sur la mesure de l'excédent fractionnaire (10 MHz). Nos mesures s'étalant sur une plage $\Delta\lambda$ de 200 Å environ (de 5921 Å à 6140 Å) nous avons obtenu l'intervalle entre ordres du Pérôt-Fabry à 10^{-5} près. Tout ceci a été fait en supposant que le déphasage à la réflexion sur les couches multidiélectriques du Pérôt-Fabry était constant. En effet on peut estimer que ce déphasage correspond à des variations d'épaisseur du Pérôt-Fabry de l'ordre de $\Delta\lambda$, soit des variations relatives inférieures à 10^{-6} . Si l'on voulait une précision supérieure il faudrait en tenir compte.

Dans un deuxième temps nous avons utilisé cette valeur de l'intervalle entre ordres pour mesurer les écarts d'énergie entre niveaux d'une même sous-configuration. Les résultats sont rassemblés dans le tableau II. Nous y donnons aussi la valeur calculée à partir des tables de longueurs d'onde. En toute rigueur nos résultats ne sont valables qu'à une pression de 0,6 torr. Les raies que nous observons sont élargies et déplacées à cause des collisions.

| | <i>Valeur expérimentale</i> | <i>Valeur calculée à partir des tables</i> |
|---|------------------------------|--|
| $E(4d' [\frac{3}{2}] 1) - E(4d' [\frac{5}{2}] 3)$ | $11869,2 \pm 1 \text{ mK}$ | $11865,2 \text{ mK}$ |
| $E(4d' [\frac{3}{2}] 2) - E(4d' [\frac{5}{2}] 3)$ | $1051,6 \pm 0,2 \text{ mK}$ | $1050,5 \text{ mK}$ |
| $E(4d' [\frac{5}{2}] 3) - E(4d' [\frac{5}{2}] 2)$ | $924,9 \pm 0,2 \text{ mK}$ | $931,3 \text{ mK}$ |
| $E(4d [\frac{5}{2}] 3) - E(4d [\frac{3}{2}] 2)$ | $37107,0 \pm 1,7 \text{ mK}$ | $37108,2 \text{ mK}$ |
| $E(5s' [\frac{1}{2}] 1) - E(5s' [\frac{1}{2}] 0)$ | $50178,2 \pm 1,8 \text{ mK}$ | $50180,2 \text{ mK}$ |

$$(1 \text{ mk} = 10^{-3} \text{ cm}^{-1} \approx 30 \text{ MHz})$$

TABLEAU II

et ce déplacement peut être différent pour les divers niveaux que nous considérons. Cependant des mesures préliminaires ⁽⁸⁾ nous ont montré que le déplacement par pression était de l'ordre de 4 MHz à 0,6 torr. Les marges d'erreur que nous donnons sont suffisamment grandes pour que l'erreur due aux différences entre ces déplacements ne fausse pas les résultats. Par contre ces valeurs sont relatives à l'isotope 20 et ne sont pas valables pour l'isotope 22 à cause des déplacements isotopiques.

Nous voyons que l'écart entre la valeur mesurée et la valeur calculée peut être significatif. Ceci illustre bien la puissance de la méthode que nous utilisons. Les mesures que nous avons faites sont encore très grossières et il doit être possible de mesurer les longueurs d'onde des transitions à deux photons avec une précision dix fois supérieure à celle des tables de longueurs d'onde actuelles. Ceci présente un intérêt certain dans la mesure où le néon est un étalon secondaire de longueur.

C H A P I T R E I I I

TRANSITION A TROIS PHOTONS SANS EFFET DOPPLER

Nous présentons dans ce chapitre l'expérience de spectroscopie à trois photons que nous avons faite sur l'atome de sodium. Cette expérience a essentiellement un caractère de démonstration, le but étant de mettre en évidence la suppression de l'effet Doppler lorsque l'impulsion totale des photons absorbés est nulle. Après avoir exposé le principe des transitions à trois photons sans effet Doppler nous présentons le cas particulier de la transition entre les états $3S_{1/2}$ et $3P_{1/2}$ de l'atome de sodium. Nous décrivons enfin le montage expérimental et les résultats que nous avons obtenus.

I - ABSORPTION A TROIS PHOTONS SANS EFFET DOPPLER

1°/ Principe de la spectroscopie sans effet Doppler à trois photons

Nous avons exposé au premier chapitre le principe de l'absorption à deux photons sans élargissement Doppler en nous plaçant dans le référentiel de l'atome. Considérons maintenant ce qui se passe dans le référentiel du laboratoire. Dans ce référentiel l'impulsion totale des photons absorbés est nulle. Il n'y a donc pas de modification du mouvement de l'atome et toute l'énergie des deux photons sert à changer l'état interne de l'atome. La condition de résonance est alors indépendante de la vitesse et il y a suppression de l'effet Doppler. Notons que ce raisonnement, fondé sur la conservation de la quantité de mouvement, n'est qu'une manière différente de présenter le même phénomène physique.

Présenté de cette manière le raisonnement se généralise facilement au cas de l'absorption de n photons ($n \geq 2$). Supposons que l'atome interagisse avec n ondes progressives de vecteur d'onde \vec{k}_i et de pulsations ω_i . Nous choisissons leur géométrie de manière telle que l'impulsion totale des photons absorbés soit nulle :

$$\sum_i \hbar \vec{k}_i = \vec{0} \quad (\text{III-1})$$

Ecrivons l'équation de conservation de l'énergie lorsque l'atome transite d'un état g d'énergie $\hbar\omega_g$ vers un état e d'énergie $\hbar\omega_e$. L'énergie cinétique de l'atome étant inchangée au cours de l'absorption, nous avons :

$$\hbar\omega_e - \hbar\omega_g = \sum_i \hbar \omega_i \quad (\text{III-2})$$

Cette condition est indépendante de la vitesse de l'atome et il y a donc suppression de l'effet Doppler. Ceci est illustré dans le cas de l'absorption à trois photons par la figure (III-1).

En fait il n'est pas nécessaire que tous les photons soient absorbés. Prenons par exemple le cas des transitions à trois photons

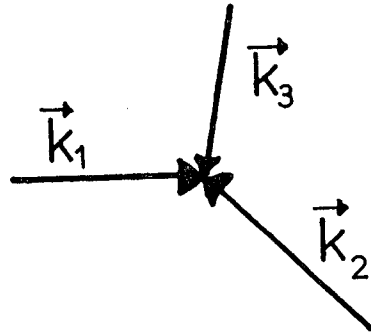
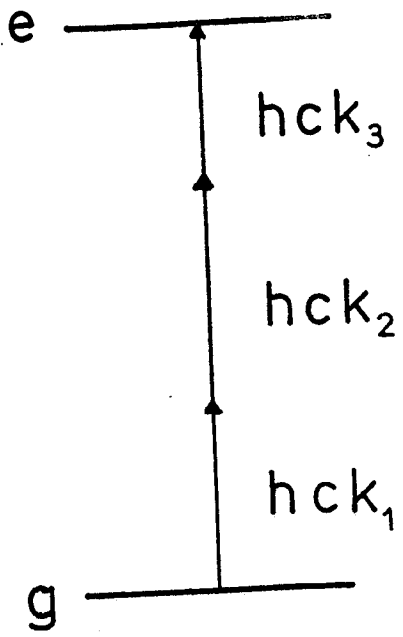


Figure III.1

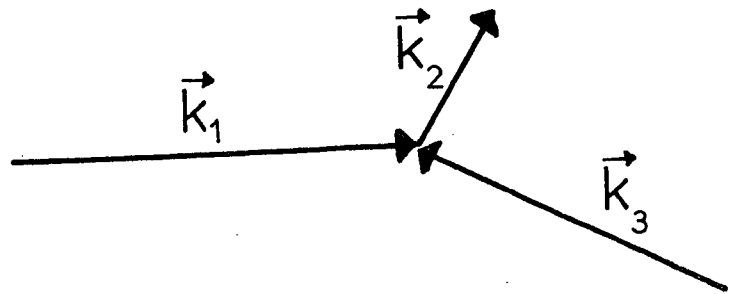
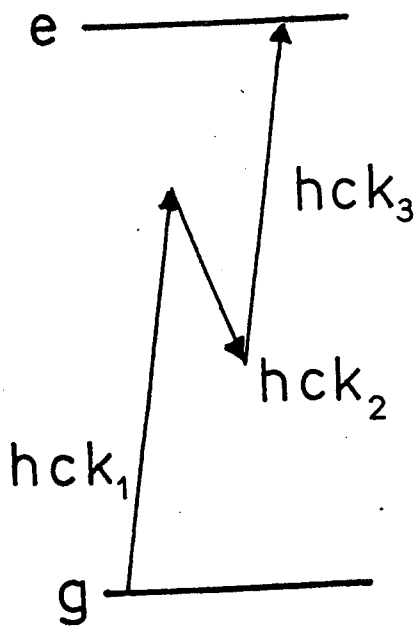


Figure III.2

(figure III-2). L'atome peut absorber deux photons des ondes numéro un et trois et réémettre de manière stimulée un photon de l'onde numéro deux. Il y a suppression de l'effet Doppler si l'impulsion globale des photons reste inchangée au cours du processus :

$$\hbar \vec{k}_1 + \hbar \vec{k}_3 = \hbar \vec{k}_2 \quad (\text{III-3})$$

L'équation de conservation de l'énergie s'écrit alors :

$$\hbar(\omega_e - \omega_g) = \hbar\omega_1 - \hbar\omega_2 + \hbar\omega_3 \quad (\text{III-4})$$

(Ces équations s'obtiennent en changeant le signe de \vec{k}_2 et ω_2 dans les équations (III-1) et (III-2)).

Notons que les conditions pour obtenir la suppression de l'effet Doppler sont moins restrictives dans le cas de l'absorption à n photons ($n \geq 3$) que dans le cas de l'absorption à deux photons. Pour l'absorption à trois photons par exemple il suffit qu'il soit possible de former un triangle avec les pulsations ω_1 , ω_2 et ω_3 . Dans le cas de l'absorption à deux photons il faut par contre que les fréquences des deux photons absorbés soient égales, ce qui les détermine complètement.

2°/ Probabilité d'absorption à trois photons

Nous présentons maintenant un calcul de la probabilité de transition à trois photons afin de pouvoir évaluer l'ordre de grandeur des signaux que l'on veut voir. Nous faisons ce calcul en utilisant le formalisme de l'atome habillé ⁽¹⁾. Nous supposons que l'atome interagit avec trois modes du champ électromagnétique 1, 2 et 3. Les états $|n_1, n_2, n_3\rangle$ sont les états propres du hamiltonien du rayonnement H_R .

$$H_R |n_1, n_2, n_3\rangle = (n_1 \hbar \omega_1 + n_2 \hbar \omega_2 + n_3 \hbar \omega_3) |n_1, n_2, n_3\rangle$$

Soit H_A le hamiltonien de l'atome libre. On tient compte de la durée de vie des états excités en ajoutant à l'énergie $\hbar\omega_p$ du niveau p la partie

imaginaire $i\hbar \frac{\Gamma_p}{2}$:

$$H_A |g\rangle = \hbar\omega_g |g\rangle$$

$$H_A |p\rangle = \hbar(\omega_p - i \frac{\Gamma_p}{2}) |p\rangle^*$$

Nous nous plaçons dans l'approximation dipolaire électrique. Le hamiltonien d'interaction entre l'atome et le champ de rayonnement est la somme de trois termes V_j relatifs à chacun des modes considérés.

$$V_j = -i \left(\frac{\hbar\omega_j}{2\epsilon_0 L^3} \right)^{1/2} \vec{D} \cdot (a_j \vec{\epsilon}_j^* - a_j^+ \vec{\epsilon}_j) \quad (\text{III-5})$$

a_j et a_j^+ sont les opérateurs d'annihilation et de création d'un photon j d'énergie $\hbar\omega_j$ et de polarisation $\vec{\epsilon}_j$.

Nous calculons les états propres du hamiltonien total. Lorsqu'il y a interaction entre l'atome et le rayonnement l'état $|g, n_1, n_2, n_3\rangle$ est mélangé avec l'état $|e, n_1-1, n_2-1, n_3-1\rangle$. Un calcul de perturbation du troisième ordre permet d'obtenir l'état propre $\overline{|g, n_1, n_2, n_3\rangle}$ du hamiltonien total :

$$\overline{|g, n_1, n_2, n_3\rangle} \approx |g, n_1, n_2, n_3\rangle + \frac{1}{\hbar[(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3) - \omega_{eg} - i\frac{\Gamma_e}{2}]} |e, n_1-1, n_2-1, n_3-1\rangle + \dots$$

$$\sum_{\{1,2,3\}} \langle e, n_1-1, n_2-1, n_3-1 | V_3 \frac{1}{E_g - H_0} V_2 \frac{1}{E_g - H_0} V_1 |g, n_1, n_2, n_3\rangle \quad (\text{III-6})$$

Nous faisons la somme sur toutes les permutations $\{1,2,3\}$; E_g est l'énergie de l'état $|g, n_1, n_2, n_3\rangle$ et H_0 est le hamiltonien non perturbé $H_A + H_R$. Nous n'avons pas écrit dans l'expression (III-6) les autres processus à un, deux et trois photons qui peuvent coupler l'état atomique g à un autre état. Nous supposons que les énergies des états atomiques et que les énergies des photons sont telles qu'aucun de ces processus ne soit résonnant.

* Le signe de i correspond à l'équation de Schrödinger écrite sous la forme :

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\psi\rangle = H |\psi\rangle$$

Il y a une erreur de signe dans la formule A-2 de la référence (2).

Le système dans l'état $|g, n_1, n_2, n_3\rangle$ a une certaine probabilité P de se trouver dans l'état atomique e :

$$P = \frac{1}{\hbar^2 [(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 - \omega_{eg})^2 + \frac{1}{4} \Gamma_e^2]} \left| \sum_{\{1,2,3\}} \langle e, n_1-1, n_2-1, n_3-1 | V_3 \frac{1}{E_g - H_0} V_2 \frac{1}{E_g - H_0} V_1 | g, n_1, n_2, n_3 \rangle \right|^2 \quad (\text{III-7})$$

Pour un système se trouvant dans l'état e la probabilité de disparaître est Γ_e par unité de temps. L'état $|g, n_1, n_2, n_3\rangle$ a donc une durée de vie finie $\frac{1}{\Gamma_g^{(3)}}$ telle que :

$$\Gamma_g^{(3)} = P \Gamma_e \quad (\text{III-8})$$

En utilisant les formules (III-6) , (III-8) et (III-9) nous explicitons la probabilité de transition à trois photons $\Gamma_g^{(3)}$:

$$\Gamma_g^{(3)} = \frac{n_1 \omega_1 n_2 \omega_2 n_3 \omega_3 \hbar}{(2\epsilon_0)^3} \times \frac{\Gamma_e}{(\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 - \omega_{eg})^2 + \frac{1}{4} \Gamma_e^2} \times |\langle e | Q | g \rangle|^2 \quad (\text{III-9})$$

où :

$$Q = \sum_{\substack{\{1,2,3\} \\ r r'}} \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_3 |r'\rangle \frac{1}{\hbar \Delta\omega'} \langle r' | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_2 |r\rangle \frac{1}{\hbar \Delta\omega} \langle r | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon}_1 \quad (\text{III-10})$$

Nous avons introduit les défauts d'énergie $\Delta\omega$ et $\Delta\omega'$ * :

$$\Delta\omega = \omega_r - \omega_g - \omega_1 \quad \Delta\omega' = \omega_{r'} - \omega_g - \omega_1 - \omega_2 \quad (\text{III-11})$$

Ces expressions sont analogues à celles que nous avons obtenues pour l'absorption à deux photons (I-4) et (I-5). Les propriétés de symétrie de la transition sont contenues dans l'opérateur Q, que nous baptisons "opérateur transition à trois photons". L'interprétation physique de l'élément de

* Nous utilisons ici pour le défaut d'énergie $\Delta\omega$ une notation opposée à celle utilisée dans les références (2,3).

matrice $\langle e|Q|g\rangle$ est simple : l'atome passe de l'état fondamental g à l'état excité e par absorption de trois photons en transitant par les états relais r et r' . Les dénominateurs $\Delta\omega$ et $\Delta\omega'$ signifient que ces états relais ne sont pas résonnants pour les transitions à un et deux photons. Il faut enfin sommer sur les niveaux relais et sur l'ordre dans lequel l'atome absorbe les photons, car il y a interférence entre tous les chemins possibles.

3°/ Calcul d'ordre de grandeur

Nous allons maintenant faire un calcul de l'ordre de grandeur de la probabilité d'absorber trois photons de même énergie. Pour cela nous supposons qu'il existe deux niveaux relais r et r' qui sont presque résonnants et qui ont donc une contribution prépondérante. Nous calculons la probabilité totale d'absorption à trois photons $\Gamma_g^{(3)}$, c'est-à-dire que nous faisons la somme sur les sous-niveaux Zeeman de l'état excité. On a dans ces conditions au maximum de la résonance :

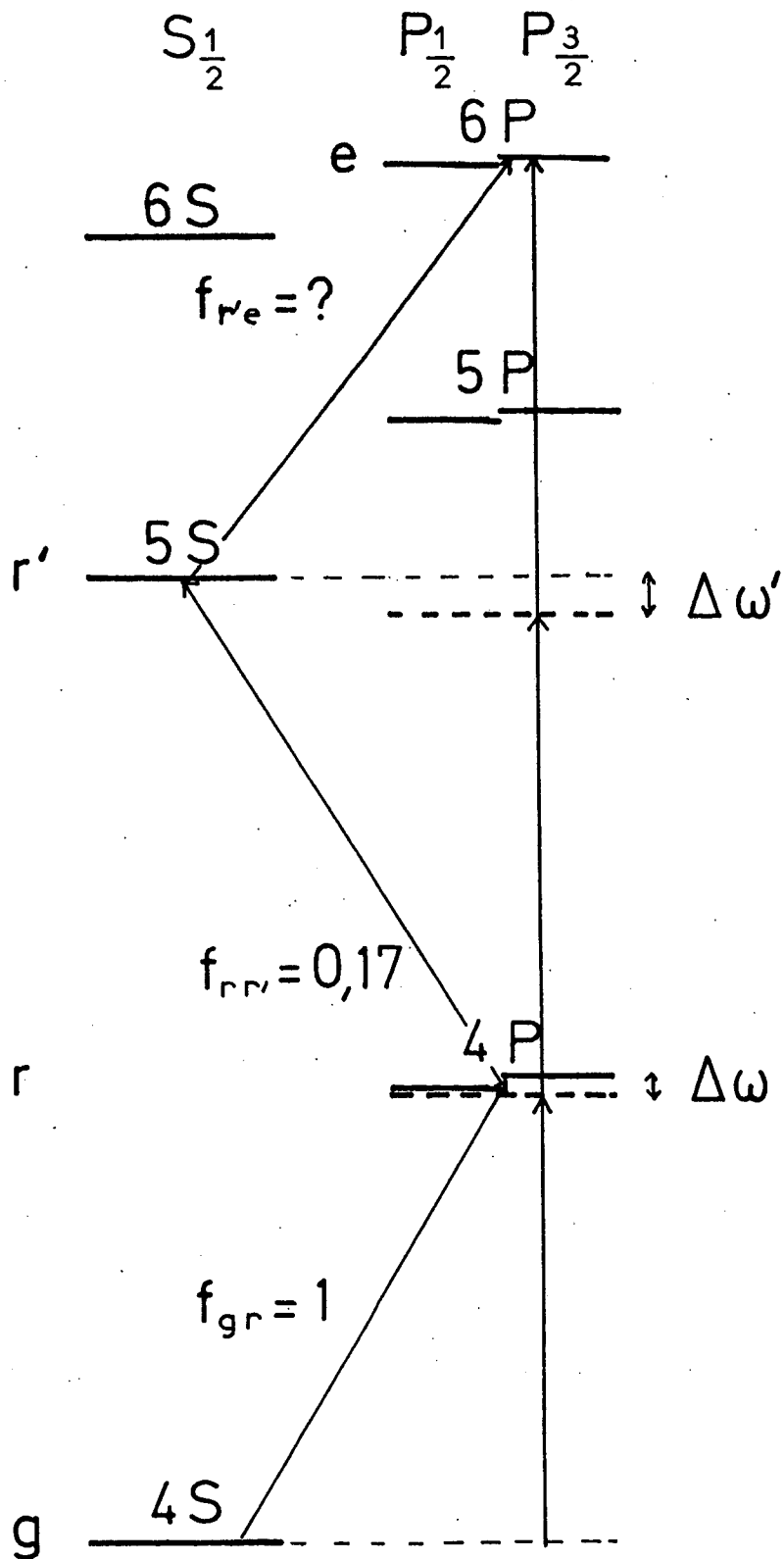
$$\Gamma_g^{(3)} = \frac{n^3 \omega^3}{(\epsilon_0 \hbar)^3} \times \frac{1}{2\Gamma_e} \sum_m \left| 6 \langle e | J_e m_e | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} | r' \rangle \langle r' | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} | r \rangle \langle r | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} | g \rangle \right|^2 \quad (\text{III-12})$$

Nous supposons que les trois faisceaux ont la même puissance P , la même section S et la même polarisation. Le facteur 6 correspond au fait que l'atome peut absorber les photons des ondes 1, 2 et 3 dans n'importe quel ordre. Les six possibilités interfèrent de manière constructive. Nous faisons apparaître les forces d'oscillateurs ⁽⁴⁾ :

$$f_{gr} = \frac{2 m \omega_{rg}}{3 q \hbar^2} \times \frac{|\langle r | D | g \rangle|^2}{2J_g + 1}$$

En négligeant les divers facteurs numériques qui dépendent des moments cinétiques des niveaux g , r , r' et e et des polarisations, on obtient :

$$\Gamma_g^{(3)} \sim \frac{1}{\Gamma_e} \times \frac{r_0^3}{\hbar^3} \left(\frac{P}{S} \right)^3 \frac{\lambda^3}{(\Delta\omega)^2 (\Delta\omega')^2} f_{gr} f_{rr'} f_{r'e} \quad (\text{III-13})$$



Niveaux d'énergie du calcium ionisé

Figure III. 3

r_0 est le rayon classique de l'électron ($r_0 = 2,8 \cdot 10^{-15}$ m) et λ la longueur d'onde d'excitation. Il est intéressant de comparer cette expression aux expressions analogues obtenues pour les probabilités de transition $\Gamma_g^{(1)}$ et $\Gamma_g^{(2)}$ à un et deux photons (2) :

$$\Gamma_g^{(1)} \sim \frac{1}{\Gamma_e} \frac{r_0}{h} \frac{P}{S} \lambda f_{ge} \quad (\text{III-14})$$

$$\Gamma_g^{(2)} \sim \frac{1}{\Gamma_e} \frac{r_0^2}{h^2} \left(\frac{P}{S} \right)^2 \frac{\lambda^2}{\Delta\omega^2} f_{gr} f_{re} \quad (\text{III-15})$$

Ces diverses probabilités peuvent être reliées :

$$\Gamma_g^{(3)} \sim \frac{\Gamma_e}{(\Delta\omega')^2} \Gamma_{r'}^{(1)} \Gamma_g^{(2)} \quad (\text{III-16})$$

Dans cette expression l'absorption à trois photons apparaît comme une transition résonnante à deux photons à partir du niveau fondamental g vers le niveau relai r' (probabilité $\Gamma_g^{(2)}$), suivie d'une transition à un photon non résonnante entre le niveau r' et le niveau e (probabilité $\frac{\Gamma_e}{(\Delta\omega')^2} \Gamma_{r'}^{(1)}$).

Comparons les puissances P_1, P_2, P_3 nécessaires pour obtenir la saturation des transitions à un, deux et trois photons. (Il y a saturation lorsque $\Gamma_g = \Gamma_e$). On obtient à partir de (III-13), (III-14) et (III-15) en supposant que les forces d'oscillateur sont du même ordre de grandeur ainsi que les défauts d'énergie $\Delta\omega$ et $\Delta\omega'$:

$$P_2 \sim \frac{\Delta\omega}{\Gamma_e} P_1 \quad (\text{III-17})$$

$$P_3 \sim \left(\frac{\Delta\omega}{\Gamma_e} \right)^{1/3} P_2 \quad (\text{III-18})$$

Nous voyons qu'il est plus facile de passer de l'absorption à deux photons à l'absorption à trois photons que de passer de l'absorption à un photon à l'absorption à deux photons. Cependant cela demande quand même une puissance nettement plus grande.

Considérons le cas où les défauts d'énergie sont relativement petits. Nous prenons les ordres de grandeur suivant :

$$\frac{\Delta\omega}{\omega} = \frac{1}{10} \quad \omega = 3 \times 10^{15} \text{ s}^{-1} \quad \Gamma_e = 10^7 \text{ s}^{-1}$$

Nous avons alors :

$$\frac{P_3}{P_2} \sim \left(\frac{\Delta\omega}{\Gamma_e} \right)^{1/3} \approx 300$$

La puissance nécessaire est donc nettement plus grande que pour les transitions à deux photons.

Nous allons maintenant faire une application numérique de la formule (III-13). Pour illustrer ce calcul d'ordre de grandeur nous avons choisi un cas particulier favorable, celui de la transition $3p^6 4s - 3p^6 6p$ du calcium ionisé. La figure (III-3) représente les niveaux d'énergie du calcium ionisé. Nous voyons que les états $4P$ et $5S$ sont presque résonnants à un et deux photons. Ils ont donc une contribution prépondérante et la formule (III-13) s'applique bien à cet exemple. Nous utilisons les valeurs numériques suivantes :

$$\begin{aligned} S &= 0,1 \text{ mm}^2 & P &= 10 \text{ kWatt} \\ \lambda &= 4000 \text{ \AA} & f_{gr} &= 1 & f_{rr'} &= 0,17 & f_{r'e} &= 0,10 \\ \Delta\omega &= 470 \text{ cm}^{-1} & \Delta\omega' &= 2500 \text{ cm}^{-1} \end{aligned}$$

Ces valeurs sont déduites des tables du N.B.S., excepté la force d'oscillateur $f_{r'e}$ que nous avons choisie arbitrairement. La puissance choisie est à peu près celle que fournissent les lasers à colorants pompés par des lasers à azote. La largeur spectrale $\Delta\nu$ de ces lasers est de l'ordre de 60 Mz. Elle est donc plus grande que la largeur naturelle Γ_e . Nous en tenons compte dans le calcul en remplaçant Γ_e par $3\Delta\nu$. Dans ces conditions nous obtenons :

$$\Gamma_g^{(3)} \sim 10^4 \text{ s}^{-1}$$

Il est donc possible d'obtenir une probabilité de transition appréciable en utilisant des lasers en impulsion qui délivrent une puissance importante. Cela semble par contre exclu avec des lasers fonctionnant en régime continu. Ces lasers ayant une puissance de l'ordre de 0,1 Watt (10^5 fois moins que dans l'exemple ci-dessus), la probabilité de transition $\Gamma_g^{(3)}$ ne serait plus que de 10^{-11} s^{-1} .

Précisons bien cependant que ces calculs d'ordre de grandeur ne sont valables que dans le cas de l'*absorption* de trois photons de même énergie. Les résultats peuvent être totalement différents si on a la possibilité de diminuer les défauts d'énergie $\Delta\omega$ et $\Delta\omega'$, de manière à faire croître la probabilité de transition. Cela est possible si l'on dispose de trois sources lumineuses de longueur d'onde différentes, ou bien si l'on provoque l'émission stimulée de l'un des trois photons. C'est ce que nous avons fait pour arriver à observer une transition à trois photons dans l'atome de sodium en utilisant des lasers continus.

II - PRESENTATION DE LA TRANSITION A TROIS PHOTONS ENTRE LES ETATS $3S_{1/2}$ ET $3P_{1/2}$ DU SODIUM

Après avoir présenté le principe de l'expérience, nous étudions dans ce paragraphe les règles de sélection de la transition à trois photons et l'importance des déplacements lumineux.

1°/ Principe de l'expérience

Comme nous l'avons déjà signalé au début de ce chapitre, il n'est pas nécessaire que tous les photons soient absorbés : il peut y avoir par exemple émission stimulée de l'un des photons et absorption des deux autres (figure III-2). L'idée de l'expérience sur le sodium est de considérer un processus de ce type pour lequel le niveau initial g et le niveau excité e

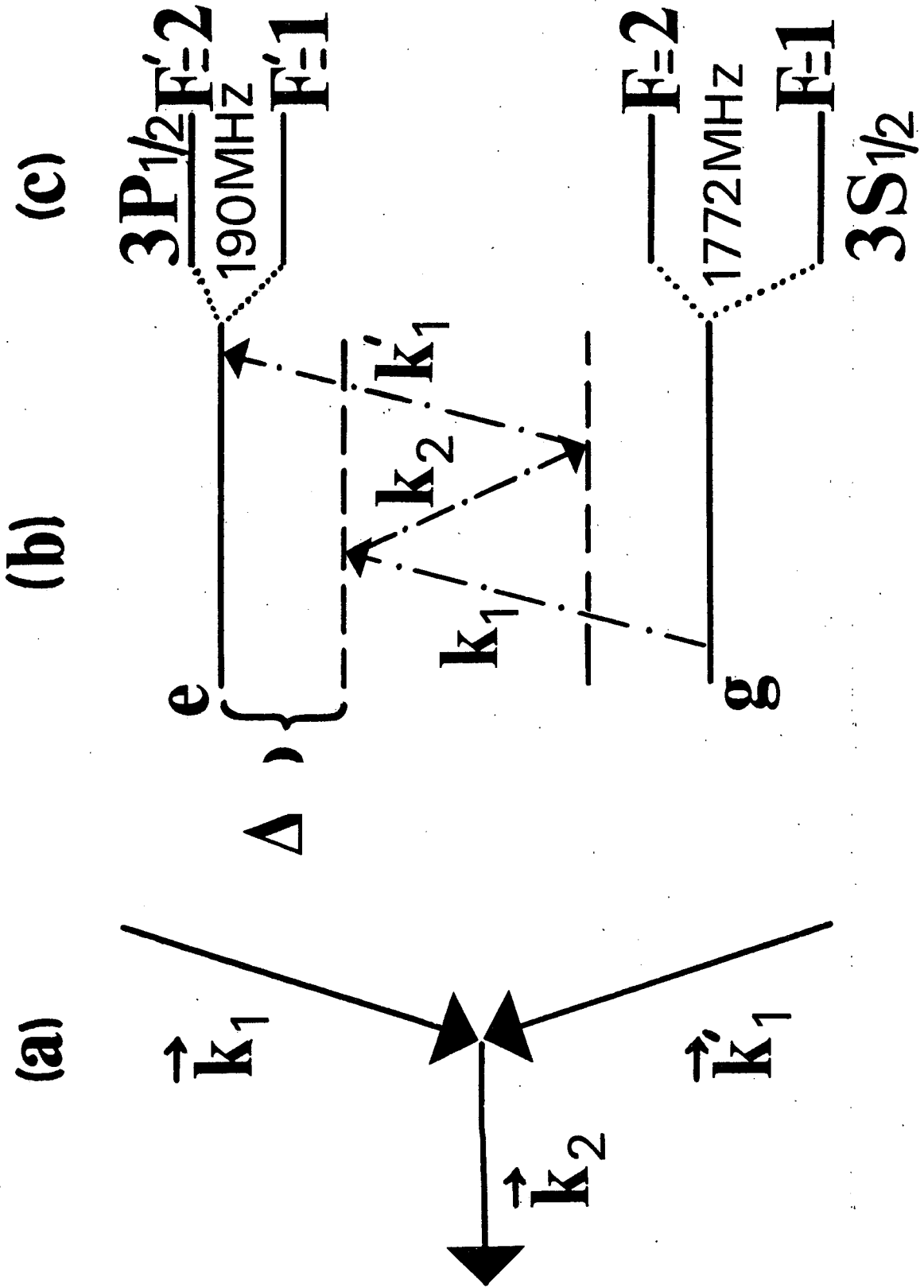


Figure III.4

serviraient de niveaux relais prépondérants. Nous obtenons alors le schéma de la figure (III-4b). Dans un tel diagramme les deux photons absorbés ont la même énergie $\hbar[(\omega_e - \omega_g) - \Delta\omega]$ tandis que le photon émis a pour énergie $\hbar[(\omega_e - \omega_g) - 2\Delta\omega]$. Pour supprimer l'effet Doppler les vecteurs d'onde doivent être disposés en triangle (figure III-4a). Le principal avantage de ce processus est que l'on peut choisir le défaut d'énergie $\Delta\omega$ aussi petit que l'on veut de manière à avoir une probabilité de transition appréciable.

Il est intéressant de remarquer le lien existant entre ce processus et le spectre de fluorescence d'un atome irradié par une onde monochromatique intense. Lorsqu'on éclaire un atome (supposé immobile) avec une onde de faible intensité, la lumière de fluorescence a exactement la même fréquence que l'onde incidente (à l'effet de recul près) ⁽⁵⁾. Par contre lorsque l'intensité lumineuse est forte, le spectre de fluorescence se complique et il apparaît deux bandes latérales. L'étude théorique de cet effet a été faite en particulier par COHEN-TANNOUDJI ⁽⁶⁾. Sa mise en évidence expérimentale a été réussie récemment par plusieurs équipes ⁽⁷⁾. Nous allons nous intéresser au cas particulier où l'on excite l'atome en dehors de la résonance. Le spectre de fluorescence a été reproduit sur la figure (III-5a). La raie centrale, centrée sur la fréquence incidente ω correspond au diagramme (III-5b) : l'atome absorbe un photon et retombe dans l'état fondamental en émettant un photon spontané. Les deux raies latérales peuvent s'interpréter en considérant le diagramme (III-5c) : dans le processus global, l'atome émet deux photons spontanés de fréquence ω'_{eg} et $2\omega - \omega'_{eg}$; ω'_{eg} est la fréquence de la transition lorsqu'on tient compte des déplacements lumineux :

$$\omega'_{eg} = \omega_e - \omega_g + \omega'_e - \omega'_g$$

Le processus auquel sont dues les raies latérales de la fluorescence est donc le même que celui que nous utilisons pour la transition à trois photons. La seule différence est qu'il y a émission spontanée de deux photons alors que dans notre cas l'émission du photon intermédiaire est stimulée.

2°/ La transition $3S_{1/2} - 3P_{1/2}$ du sodium

Nous allons maintenant examiner le cas particulier de la transition à trois photons entre l'état fondamental $3S_{1/2}$ et l'état de résonance $3P_{1/2}$. Lorsqu'on tient compte du spin nucléaire $I = 3/2$ ces niveaux se décomposent en deux niveaux de structure hyperfine $F = 1$ et $F = 2$ (figure 4c). Les structures correspondantes valent 1772 MHz pour l'état fondamental et 190 MHz pour l'état $3P_{1/2}$ ⁽⁸⁾. Nous reprenons dans ce cas l'expression (III-10) qui définit l'opérateur transition à trois photons. Pour simplifier nous allons faire l'approximation de l'atome à deux niveaux, c'est-à-dire que le défaut d'énergie $\Delta\omega$ est supposé grand par rapport aux structures hyperfines de l'état g et de l'état e, et petit par rapport à la structure fine de l'état 3P :

$$190 \text{ MHz}, 1772 \text{ MHz} \ll \Delta\omega \ll 17 \text{ cm}^{-1} \quad (\text{III-19})$$

Le calcul qui a été présenté ci-dessus était valable lorsque l'atome absorbe trois photons. En fait, lorsqu'il y a émission d'un photon, il suffit de compter l'énergie de ce photon comme négative et de remplacer la polarisation $\vec{\epsilon}$ par son complexe conjugué $\vec{\epsilon}^*$. Pour simplifier nous supposons que les trois ondes ont la même polarisation linéaire $\vec{\epsilon}$. Dans ces conditions l'opérateur transition à trois photons s'écrit (nous nous limitons à la restriction de l'opérateur transition à trois photons aux états e et g) :

$$Q = 2 P_e \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} \frac{P_g}{\Delta\omega} \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} \frac{P_e}{\Delta\omega} \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} P_g \quad (\text{III-20})$$

Le facteur 2 vient du fait que l'atome a deux possibilités dans l'ordre d'absorption des photons ; P_g et P_e sont les projecteurs sur l'état fondamental et l'état excité.

Examinons les propriétés de symétrie de cet opérateur. Considérons tout d'abord l'opérateur :

$$P_g \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} \frac{P_e}{\Delta\omega} \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} P_g \quad (\text{III-21})$$

Cet opérateur est un opérateur analogue à l'opérateur transition à deux

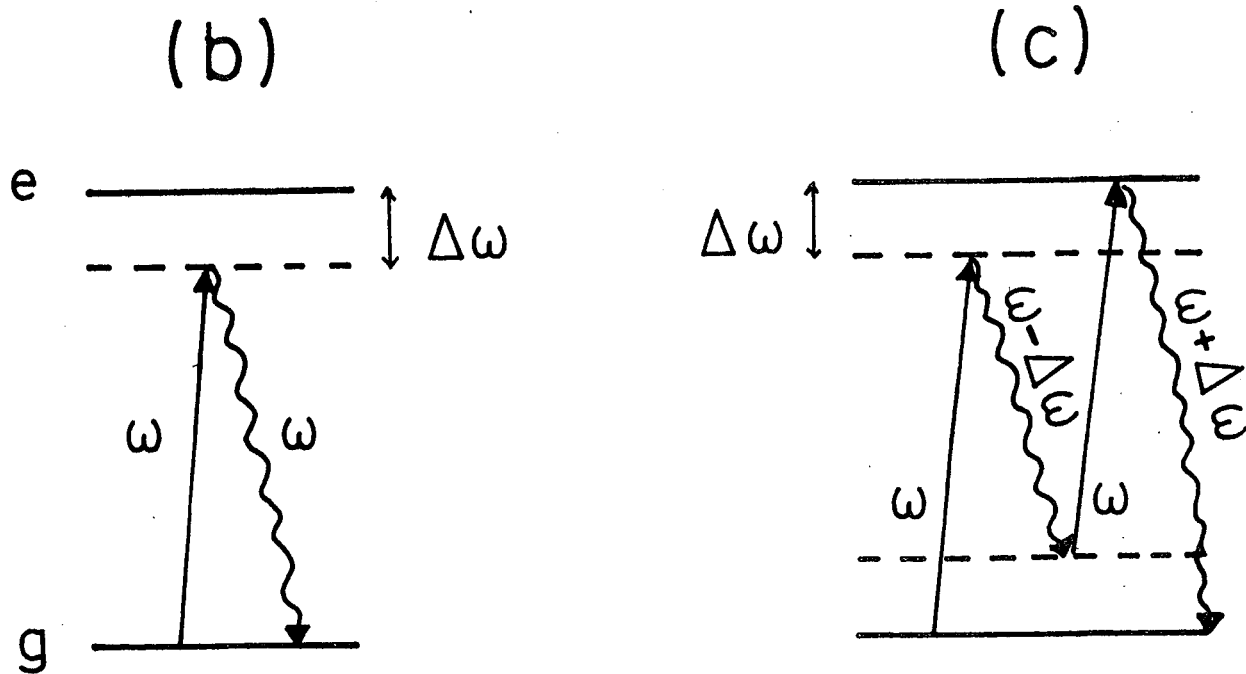
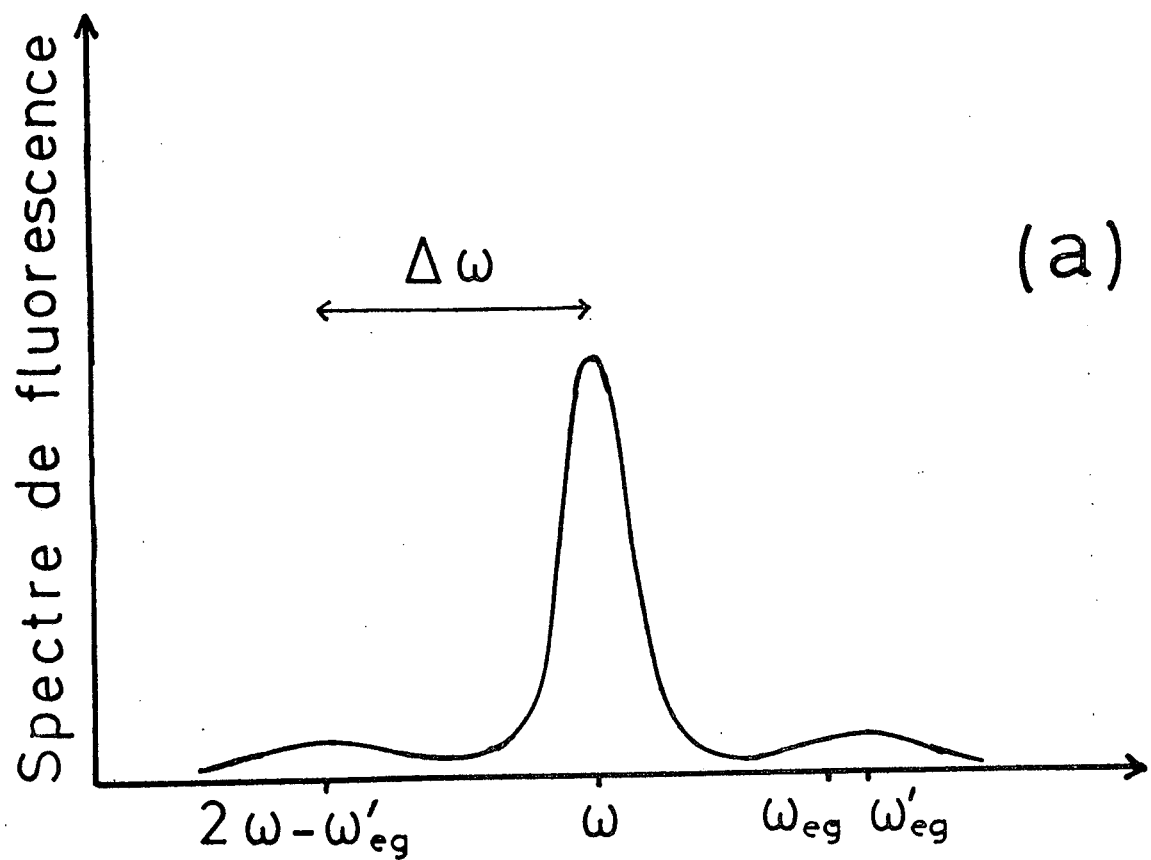


Figure III. 5

photons défini au premier chapitre. C'est donc la combinaison linéaire d'un opérateur de rang zéro et d'un opérateur de rang deux. De plus cet opérateur n'agit que sur les variables orbitales. La composante de rang deux entre deux états de moment cinétique électronique $J = 1/2$ est donc nulle. Cet opérateur est donc un opérateur scalaire. Nous le combinons avec l'opérateur de rang un $P_e \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} \frac{P_g}{\Delta\omega}$ pour obtenir l'opérateur Q. Ce dernier est donc aussi un opérateur de rang un.

Dans le cas de la transition $3S_{1/2} - 3P_{1/2}$, l'opérateur transition à trois photons est un opérateur vectoriel. Les intensités relatives des composantes de structure hyperfine sont donc les mêmes que celles obtenues pour l'absorption à un seul photon.

3°/ Evaluation des déplacements lumineux

Comme nous l'avons vu, il est nécessaire pour observer une transition à trois photons d'utiliser de fortes intensités lumineuses. Les déplacements lumineux risquent donc d'être importants. Nous allons les évaluer dans le cas particulier de la transition $3S_{1/2} - 3P_{1/2}$ du sodium.

En faisant l'approximation de l'atome à deux niveaux et en supposant les polarisations identiques et linéaires, les expressions (I-58) et (I-59) deviennent :

$$\omega'_g = - \frac{\omega}{2\epsilon_0 \hbar} \langle g | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} P_e \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} | g \rangle \left(\frac{n_1}{\Delta\omega} + \frac{n_2}{2\Delta\omega} + \frac{n_3}{\Delta\omega} \right) \quad (\text{III-22})$$

$$\omega'_e = \frac{\omega}{2\epsilon_0 \hbar} \langle e | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} P_g \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} | e \rangle \left(\frac{n_1}{\Delta\omega} + \frac{n_2}{2\Delta\omega} + \frac{n_3}{\Delta\omega} \right) \quad (\text{III-23})$$

Dans ces expressions $\Delta\omega$ représente le défaut d'énergie :

$$\Delta\omega = \omega_e - \omega_g - \omega_1$$

ω_1 étant la pulsation de l'un des photons absorbés.

Les opérateurs $P_g \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} P_e \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} P_g$ et $P_e \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} P_g \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} P_e$ sont des opérateurs analogues à l'opérateur (III-21). Nous pouvons donc reprendre le raisonnement fait au paragraphe précédent. Entre deux états de moment cinétique électronique $J = 1/2$ ces deux opérateurs sont des opérateurs de rang zéro. Nous en déduisons que le déplacement lumineux est le même pour les sous-niveaux Zeeman et les niveaux de structure hyperfine de l'état fondamental et de l'état excité (ceci suppose toujours que la condition (III-19) est vérifiée).

Nous allons maintenant comparer le déplacement de la raie à la probabilité de transition $\Gamma_g^{(3)}$ définie par l'expression (III-12). Dans notre cas les niveaux g et e ont la même dégénérescence et les déplacements ω'_g et ω'_e sont égaux et opposés. Nous supposons que les trois ondes ont la même intensité ($n = n_1 = n_2 = n_3$). Le déplacement Δ_3 de la transition à trois photons s'obtient à partir de (III-22) et (III-23) :

$$\Delta_3 = \omega'_e - \omega'_g \approx \frac{5}{2} \times \frac{n\omega}{\epsilon_0 \hbar} \times \frac{\langle g | \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} P_e \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} | g \rangle}{\Delta\omega} \quad (\text{III-24})$$

La probabilité de transition à trois photons $\Gamma_g^{(3)}$ s'obtient à partir de l'expression (III-12) en remplaçant l'opérateur transition à trois photons par l'expression (III-20). On en déduit alors :

$$\left(\frac{\Delta_3}{\Gamma_e} \right)^3 = \frac{125}{16} \times \frac{\Gamma_g^{(3)}}{\Gamma_e} \frac{\Delta\omega}{\Gamma_e} \quad (\text{III-25})$$

Ceci est à comparer au déplacement Δ_2 que nous avons dans le cas de l'absorption à deux photons ($\Gamma_g^{(2)}$ est la probabilité de transition à deux photons) (équation I-49) :

$$\left(\frac{\Delta_2}{\Gamma_e} \right)^2 \approx \frac{\Gamma_g^{(2)}}{\Gamma_e} \quad (\text{III-26})$$

Les calculs de probabilité de transition que nous faisons sont valables dans la mesure où il n'y a pas de saturation. Dans les deux cas des transitions à deux et trois photons nous avons donc :

$$\frac{\Gamma_g^{(2)}}{\Gamma_e} \ll 1 \quad \frac{\Gamma_g^{(3)}}{\Gamma_e} \ll 1 \quad (\text{III-27})$$

De plus nous supposons dans le calcul de $\Gamma_g^{(3)}$:

$$\frac{\Delta\omega}{\Gamma_e} \gg 1 \quad (\text{III-28})$$

Pour les transitions à deux photons les déplacements lumineux sont donc petits par rapport à la largeur naturelle de l'état excité. C'est le résultat que nous avons déjà obtenu au premier chapitre. Par contre, pour les transitions à trois photons, nous ne pouvons pas conclure, les conditions (III-27) et (III-28) ayant des effets contraires. Le déplacement lumineux ne sera négligeable que si :

$$\Gamma_g^{(3)} \ll \frac{16}{125} \Gamma_e \times \frac{\Gamma_e}{\Delta\omega} \quad (\text{III-29})$$

Cette condition est très restrictive, le défaut d'énergie $\Delta\omega$ pouvant être beaucoup plus grand que Γ_e . Ce n'est donc que pour des probabilités de transition $\Gamma_g^{(3)}$ assez faibles que le déplacement lumineux sera négligeable. Dans notre cas, pour un défaut d'énergie $\Delta\omega/2\pi$ de 15 GHz et une probabilité d'émission spontanée de Γ_e de 10^8 s^{-1} , la probabilité d'absorption à trois photons doit être inférieure à 10^4 s^{-1} pour que le déplacement lumineux devienne négligeable.

III - REALISATION EXPERIMENTALE DE LA TRANSITION A TROIS PHOTONS

Nous présentons dans ce paragraphe les résultats expérimentaux que nous avons obtenus.

1°/ Le montage expérimental

Le montage expérimental est représenté sur la figure (III-6). Nous utilisons comme sources lumineuses deux lasers à colorants Spectra-Physics 580 identiques à celui que nous avons décrit au chapitre II. Chacun

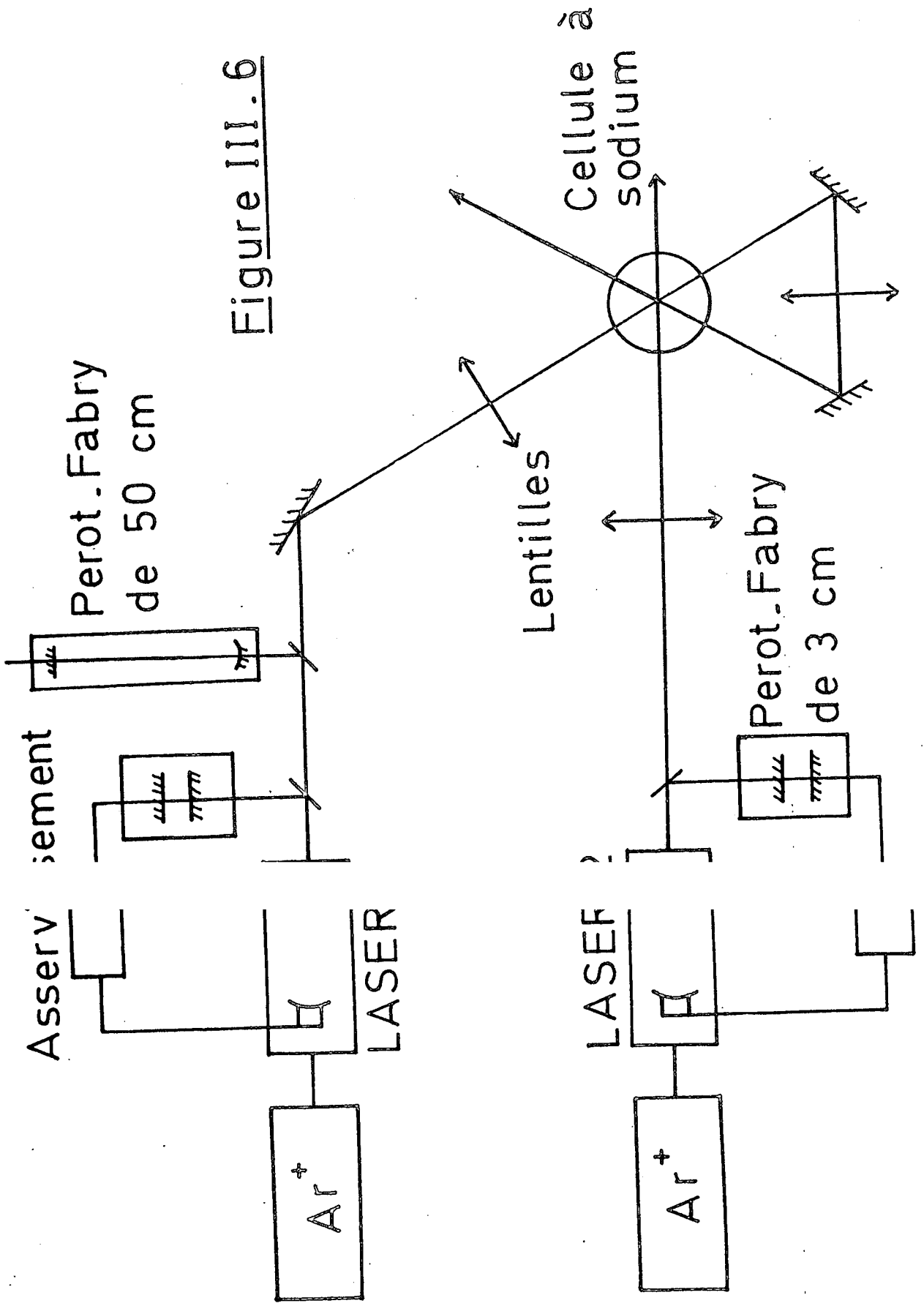


Figure III.6

de ces deux lasers est asservi sur le flanc de la courbe d'Airy d'un Pérot-Fabry de 3cm. Leurs puissances sont respectivement de 60 mW (laser 1) et 30 mW (laser 2). Par rapport à la raie de résonance $3S_{1/2} - 3P_{1/2}$, les fréquences des lasers 1 et 2 sont décalées respectivement de $\Delta\omega$ et $2\Delta\omega$. Le faisceau laser n° 1 est focalisé une première fois dans la cellule, puis, à l'aide d'un jeu de miroirs et de lentilles, refocalisé au même endroit, les deux faisceaux faisant un angle de 120° . Le faisceau venant du laser 2 est focalisé au même point, dans la direction bissectrice des deux faisceaux précédents. Au point de focalisation les trois faisceaux ont un diamètre de 100 μ environ.

La cellule à sodium est chauffée à 110°C , ce qui correspond à une pression de vapeur de 10^{-7} torr. Nous n'avons pas utilisé une pression plus forte pour deux raisons. D'une part nous détectons la transition en observant la fluorescence à 5896 Å (raie D_1). La pression doit être assez faible pour éviter la réabsorption. D'autre part, lorsqu'on augmente la pression, il apparaît des effets parasites dus aux collisions. Nous y reviendrons dans la quatrième partie de ce paragraphe. Dans cette expérience nous avons fait varier le défaut d'énergie $\frac{\Delta\omega}{2\pi}$ entre 5000 MHz et 30.000 MHz. La longueur d'onde de détection est donc très voisine des longueurs d'onde d'excitation. C'est pourquoi nous avons dû utiliser la monochromateur THR Jobin-Yvon (focale de 1,5 m) pour arriver à les séparer. Pour améliorer le rapport signal sur bruit, nous avons modulé le faisceau du laser 2 et nous détectons cette modulation dans la lumière de fluorescence à l'aide d'une détection synchrone.

La principale difficulté de cette expérience est de faire coïncider les trois faisceaux. Comme nous travaillons avec des défauts d'énergie $\Delta\omega$ relativement petits, la diffusion de la lumière par les atomes de sodium est encore très importante et les faisceaux sont parfaitement visibles dans la cellule. Une première méthode consiste donc à régler à vue la coïncidence des faisceaux. Cependant la cellule est placée dans un four et l'observation est très malaisée. En fait nous ne sommes jamais parvenus par cette méthode à une bonne coïncidence des faisceaux.

Nous avons utilisé une autre technique. Dans un premier temps

nous arrêtons le faisceau du laser 1 après son premier passage dans la cellule et nous cherchons à obtenir la coïncidence des faisceaux 1 et 2. Pour cela nous décalons d'abord la fréquence du laser 1 de manière à se placer sur la raie de résonance $3S_{1/2} - 3P_{1/2}$, la fréquence du laser 2 restant décalée de $2\Delta\omega$ par rapport à la résonance. Nous détectons la lumière de fluorescence à la fréquence de résonance. Lorsque les deux faisceaux se croisent, ils interagissent avec les mêmes atomes et des processus non linéaires faisant intervenir les faisceaux 1 et 2 apparaissent. En particulier nous avons observé que l'intensité de la lumière diffusée par le faisceau 1 était modifiée par la présence du faisceau 2 ^{*}. C'est en observant cette modification que nous faisons coïncider les faisceaux. Cet effet étant très petit, nous modulons le faisceau 2 et nous détectons cette modulation sur la lumière diffusée par le faisceau 1. Un signal apparaît lorsque les deux faisceaux se croisent. Généralement il suffit alors de régler le troisième faisceau à vue pour obtenir une coïncidence à peu près correcte des faisceaux.

2°/ Observation de la transition $3S_{1/2} - 3P_{1/2}$

Le dispositif expérimental décrit ci-dessus nous a permis d'observer le spectre d'excitation reproduit sur la figure (III-7). Nous avons obtenu cet enregistrement en laissant fixe la fréquence du laser 2 et en balayant la fréquence du laser 1. Nous voyons d'emblée que la suppression de l'effet Doppler est effective. La largeur des raies que nous observons est d'environ 60 MHz alors que la largeur Doppler est de l'ordre de 1000 MHz.

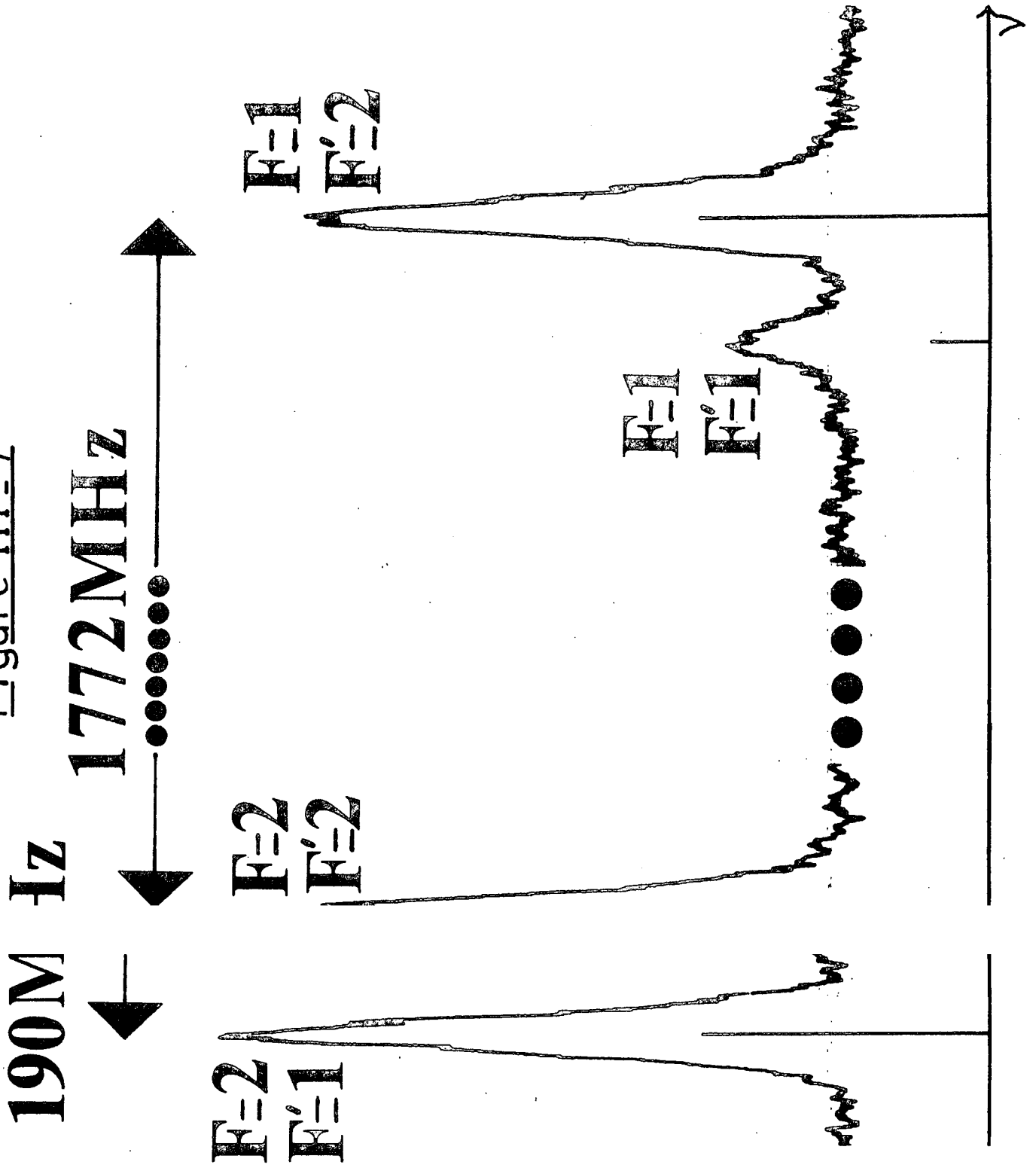
Nous allons maintenant examiner quelques points particuliers.

a) Intensité relative des différentes composantes

Les quatre raies que nous obtenons correspondent aux diverses transitions possibles entre les deux états de structure hyperfine de l'état

^{*} Une explication possible de cet effet est la suivante. Le faisceau 2 est décalé par rapport à la fréquence de résonance et il provoque donc un déplacement de cette fréquence de résonance (light shift). La modulation du faisceau 2 produit donc une modulation de la fréquence de résonance, et cette modulation peut être détectée sur la lumière diffusée par le faisceau 1 à la fréquence de résonance.

Figure III-7



$3S_{1/2}$ et ceux de l'état excité $3P_{1/2}$. Pour cet enregistrement l'écart d'énergie $\Delta\omega$ est de 15 GHz. La condition (III-19) est donc vérifiée et les intensités relatives des raies sont donc celles d'une transition à un photon. L'intensité de la transition entre les niveaux hyperfins $3S_{1/2}, F$ et $3P_{1/2}, F'$ est donné par ⁽⁹⁾ :

$$I_{F \rightarrow F'} \sim |\langle 3S_{1/2} || Q || 3P_{1/2} \rangle|^2 (2F+1)(2F'+1) \left\{ \begin{matrix} F & F' & 1 \\ J_e & J_g & I \end{matrix} \right\}^2 \quad (\text{III-30})$$

Ce sont ces intensités qui ont été reportées sur le schéma de la figure (III-7). L'accord avec l'expérience est excellent.

b) Nombre d'atomes excités

Lorsqu'on est au maximum de l'une des résonances, le signal détecté au niveau du photomultiplicateur est de l'ordre de 3×10^4 photons par seconde. Evaluons la probabilité de transition $\Gamma_g^{(3)}$. Lorsque il y a émission stimulée d'un photon, la formule (III-12) doit être modifiée : le facteur 6 doit être remplacé par un facteur 2, le photon émis n'étant pas interchangeable avec les photons absorbés. On fait alors apparaître facilement les forces d'oscillateurs ; dans le cas de la polarisation linéaire (polarisation Π) on a ($J_e = J_g = 1/2$) :

$$|\langle J_e m | D_o^1 | J_g m \rangle|^2 = \frac{3}{2} \frac{q^2 \hbar}{m\omega} f_{ge} \quad |\langle J_e 1 m o | J_g m \rangle|^2 = \frac{1}{2} \frac{q^2 \hbar}{m\omega} f_{ge}$$

On obtient alors pour la probabilité de transition $\Gamma_g^{(3)}$ (r_o est le rayon classique de l'électron : $r_o = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_o mc^2}$)

$$\Gamma_g^{(3)} = \frac{2}{\Gamma_e} \frac{r_o^3}{h^3} \frac{P_1^2 P_2}{S^3} \frac{\lambda^3}{\Delta\omega^4} f_{ge}^3 \quad (\text{III-31})$$

Nous faisons l'application numérique en utilisant les valeurs suivantes :

$$\begin{array}{lll} P_1 = 60 \text{ mWatt} & P_2 = 30 \text{ mWatt} & S = 10^{-2} \text{ mm}^2 \\ \lambda = 5896 \text{ \AA} & \frac{\Delta\omega}{2\pi} = 15 \text{ GHz} & f_{ge} = \frac{1}{3} \end{array}$$

Pour tenir compte des diverses causes d'élargissement nous remplaçons dans l'expression (III-31) la largeur théorique $\Gamma_e/2\pi$ par la largeur expérimentale, soit 60 MHz. Nous obtenons alors :

$$\Gamma_g^{(3)} = 3 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$$

La probabilité de transition est donc très forte. Cependant ce résultat est sans doute surestimé d'un facteur deux environ car nous n'avons pas tenu compte des réflexions parasites sur les faces de la cellule et des lentilles, ce qui a pour effet de diminuer la puissance lumineuse utile. Nous voyons par ailleurs que la probabilité de transition à trois photons $\Gamma_g^{(3)}$ reste bien inférieure à la probabilité d'émission spontanée qui vaut environ $7 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$.

Dans cette expérience, le volume utile est l'intersection des trois faisceaux, soit environ 10^{-6} cm^3 . Compte tenu de la pression de sodium (2×10^{-7} torr à 110° C , soit environ 4.000 atomes dans le volume utile) nous excitons environ 10^{10} atomes par seconde, ce qui correspond à peu près au courant fourni par le photomultiplicateur (10^5 photo-électrons par seconde pour la somme des diverses composantes). En effet le facteur de détection est compris entre 10^{-4} et 10^{-5} , car il faut fermer les fentes du monochromateur à 50μ environ pour obtenir une résolution de 15 GHz.

c) Largeur des raies observées

La largeur à mi-hauteur des raies que nous observons est de 60 MHz environ. Les différentes causes d'élargissement sont les suivantes :

- La durée de vie de l'état $3P_{1/2}$ est de 15 ns environ, et la largeur naturelle est donc de 10 MHz environ.
- Chacun des deux lasers a un jitter de l'ordre de 8 MHz. Comme nous l'avons vu au chapitre II (§ II, 4°) cet élargissement est à peu près gaussien. Dans ces conditions les jitter de chacun des trois lasers s'ajoutent quadratiquement ce qui donne un élargissement de 15 MHz environ.

- L'effet Doppler du premier ordre n'est totalement supprimé que si les trois faisceaux font exactement des angles de 60° . En fait ce réglage est difficile. On peut estimer qu'il reste une erreur résiduelle de 1° environ. Le résidu de largeur Doppler est alors de 20 MHz.
- Comme nous le voyons ci-dessous, les déplacements lumineux ne sont pas du tout négligeables avec les puissances lumineuses que nous utilisons. Ceci provoque un élargissement inhomogène, les différents atomes n'étant pas soumis à la même intensité. Nous verrons ci-dessous que, pour un défaut d'énergie $\Delta\omega/2\pi$ de 15 GHz, le déplacement lumineux est d'environ 70 MHz. On peut estimer que l'élargissement dû aux inhomogénéités de puissance peut être de l'ordre de 30 % du déplacement, soit de 20 MHz.
- Comme nous excitons un niveau de résonance on pourrait craindre un élargissement dû aux collisions résonnantes sodium excité - sodium dans l'état fondamental. Nous avons vérifié que la largeur des raies restait pratiquement constante lorsque la température de la cellule variait de 90°C à 180°C , soit une variation de pression de 5.10^{-8} torr à 5.10^{-5} torr. L'élargissement dû aux collisions résonnantes est donc totalement négligeable à 110°C .

3°/ Observation des déplacements lumineux

Pour mesurer les déplacements lumineux, il suffit de faire plusieurs enregistrements pour des puissances différentes. Nous avons fait l'expérience pour diverses valeurs du défaut d'énergie $\Delta\omega$. La figure (III-8) représente les deux spectres d'excitation obtenus lorsque la puissance du laser 1 passe de 25 mWatt à 45 mWatt, le défaut d'énergie étant de 5 GHz, la puissance du laser 2 restant fixe (30 mWatt). On voit un déplacement très net vers les hautes fréquences lorsqu'on augmente la puissance. Le sens du déplacement est bien celui donné par la formule (III-24). En effet la fréquence ω_1 du laser est plus petite que la fréquence de résonance ω_{eg} et $\Delta\omega$, défini en (III-11) est positif. Cependant un raisonnement simple permet de retrouver le sens du déplacement.

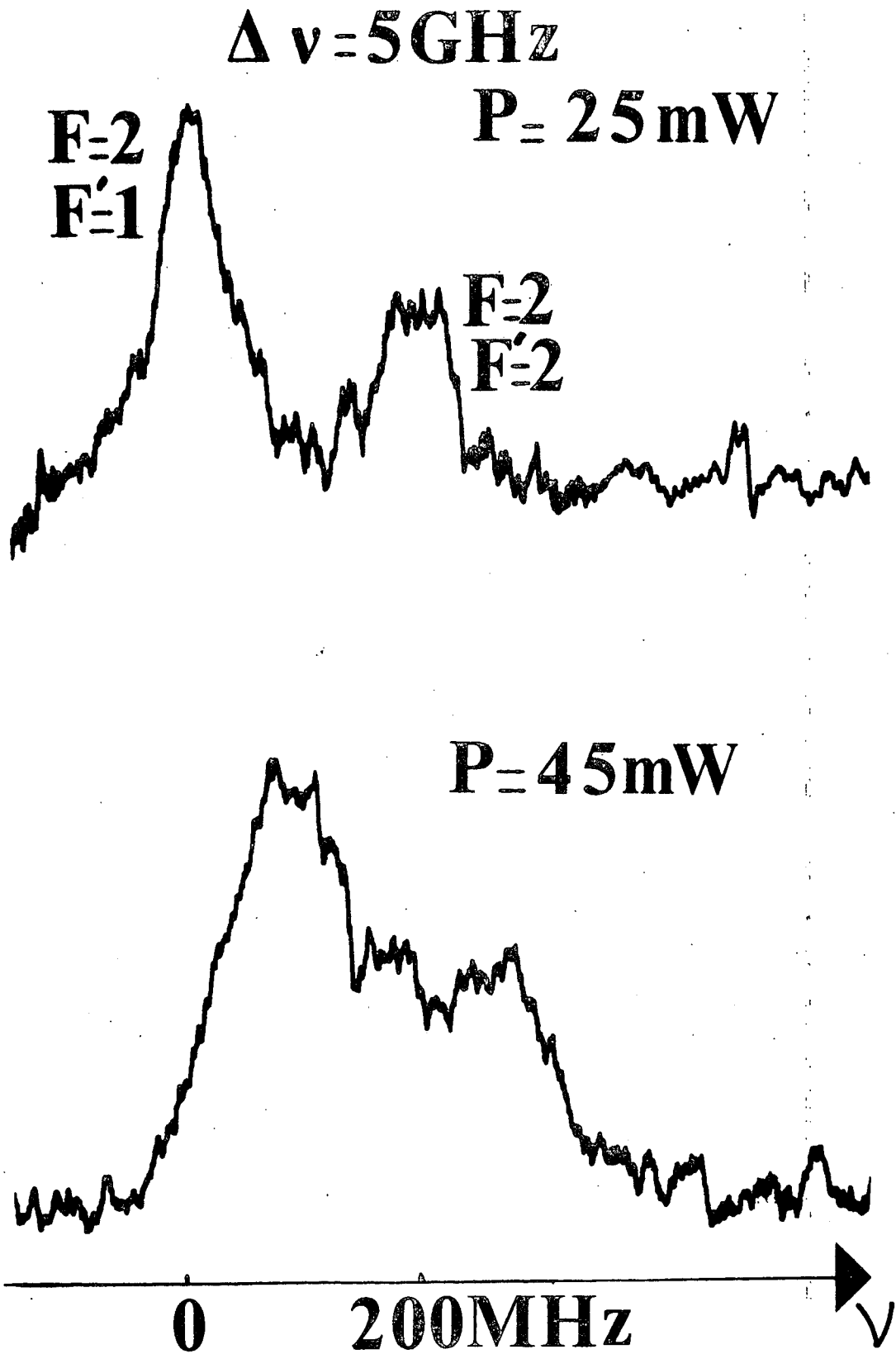


Figure III - 8

La probabilité de transition à trois photons est maximum lorsque les états $|g, n_1, n_2\rangle$ et $|e, n_1-2, n_2+1\rangle$ ont la même énergie (figure III-9). Lorsqu'on tient compte des light shift ces deux niveaux sont déplacés. Par exemple le niveau $|g, n_1, n_2\rangle$ est couplé par les processus à un photon aux niveaux $|e, n_1-1, n_2\rangle$ et $|e, n_1, n_2-1\rangle$ qui ont une énergie supérieure car ω_1 et ω_2 sont plus petits que ω_{eg} . Le niveau $|g, n_1, n_2\rangle$ est donc abaissé. L'effet est inverse pour $|e, n_1-2, n_2+1\rangle$. Les deux niveaux perturbés ne sont donc plus dégénérés. Pour qu'ils le soient à nouveau il faut par exemple augmenter la fréquence des photons 1 : le déplacement lumineux se fait donc bien vers les grandes fréquences.

Nous voyons d'autre part que lorsque la puissance augmente les courbes s'élargissent notablement. La principale cause de cet effet est due aux inhomogénéités de puissance. Les différents atomes ne sont pas soumis au même champ électromagnétique et ils subissent donc des déplacements lumineux différents. Comme nous l'avons déjà dit, l'élargissement correspondant peut être estimé à 30 % environ du déplacement. Cependant il existe d'autre cause d'élargissement qui peuvent ne pas être négligeables :

- Les enregistrements de la figure (III-8) ont été fait pour un défaut d'énergie $\Delta\omega$ de 5 GHz. Le calcul précédent de la probabilité de transition $\Gamma_g^{(3)}$ n'est donc plus valable. Lorsqu'on en tient compte on trouve que, pour une puissance P_1 de 45 mWatt, la probabilité de transition pour une composante hyperfine est de $5 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$ environ. Ceci est comparable à la probabilité d'émission spontanée ($7 \times 10^7 \text{ s}^{-1}$). La transition à trois photons commence donc à être saturée, ce qui peut provoquer un début d'élargissement. Cependant cet effet est tout à fait négligeable par rapport à l'élargissement dû aux inhomogénéités de puissance.
- Le défaut d'énergie $\Delta\omega$ restant grand devant la structure hyperfine de l'état excité (190 MHz), les différents sous niveaux Zeeman de l'état fondamental $3S_{1/2} F=2$ ont le même déplacement lumineux. Il n'en va pas de même pour l'état excité. Le déplacement du niveau excité $|F', m'\rangle$ s'écrit maintenant en ne tenant compte que du laser 1 :

$$\omega'(F'm') = \frac{n\omega}{\epsilon_0 \hbar} \left\{ \langle F'm' | \vec{\epsilon} \cdot \vec{D} \frac{P_2}{\Delta\omega_2} \vec{\epsilon} \cdot \vec{D} | F'm' \rangle + \langle F'm' | \vec{\epsilon} \cdot \vec{D} \frac{P_1}{\Delta\omega_1} \vec{\epsilon} \cdot \vec{D} | F'm' \rangle \right\}$$

Figure III_9

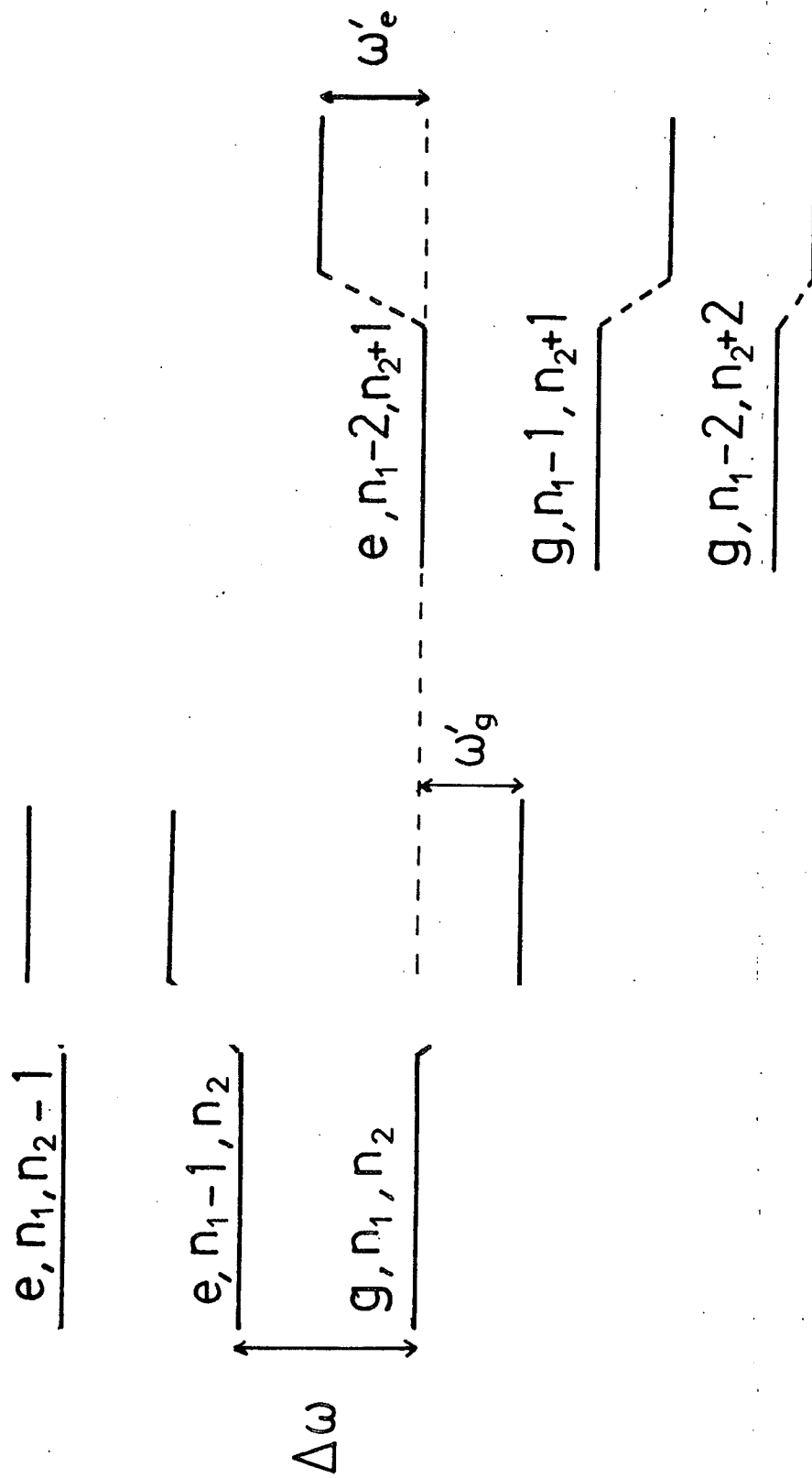
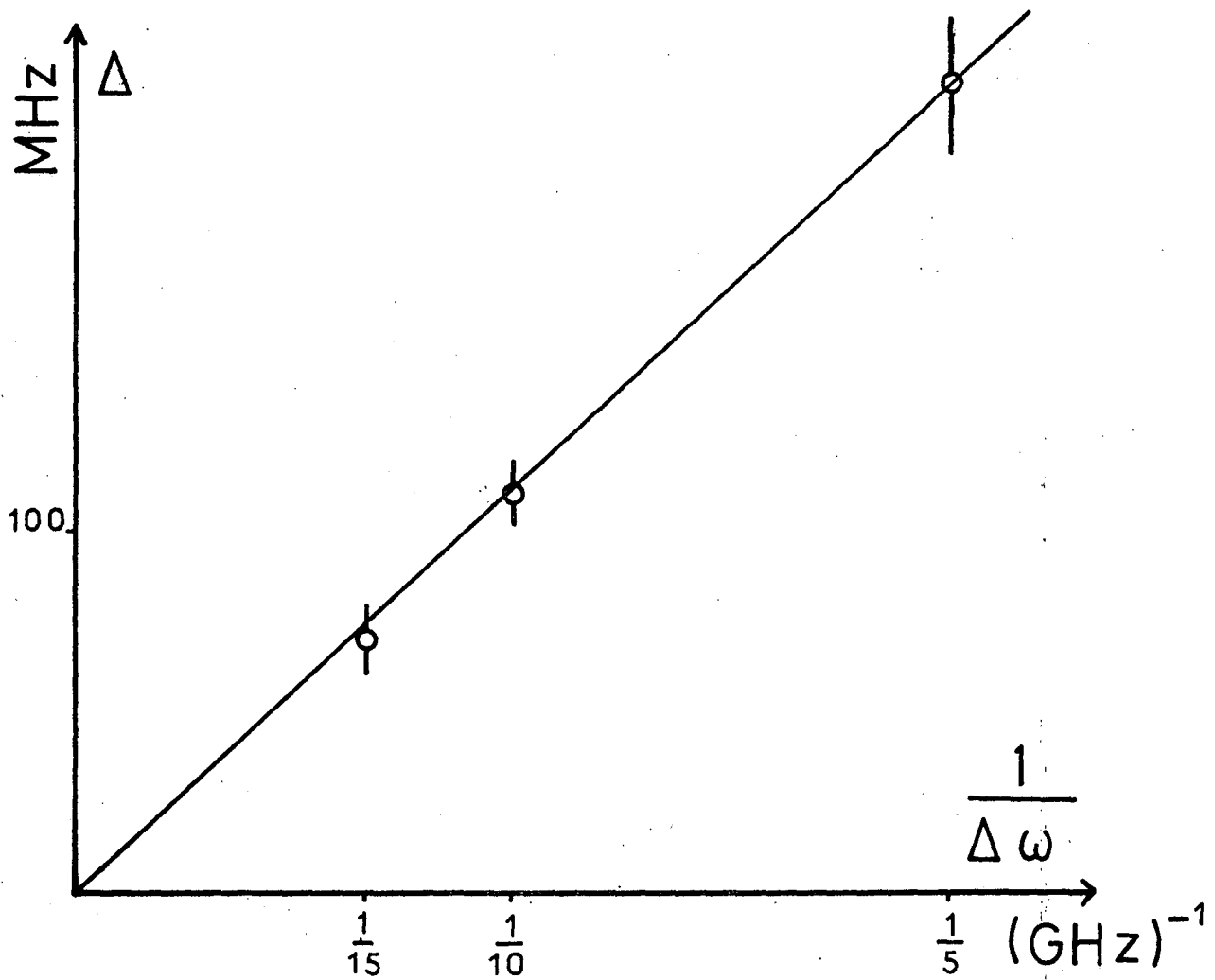


Figure III -10



Déplacement lumineux dû aux deux faisceaux absorbés pour une puissance de 60 mW en fonction de l'inverse du défaut d'énergie $\Delta\omega$.

Dans cette expression P_1 et P_2 sont les projecteurs sur les états de structure hyperfine $3S_{1/2}$ $F = 1$ et $F = 2$, $\Delta\omega_1$ et $\Delta\omega_2$ sont les défauts d'énergie relatifs à ces deux niveaux ($\Delta\omega_2 = 5$ GHz ; $\Delta\omega_1 = 5$ GHz + 1,772 GHz). Dans ces conditions chacune des deux raies se sépare en deux composantes. L'écart entre ces composantes vaut 6 % du déplacement lumineux total pour la transition $F = 2 \rightarrow F' = 1$ et 22 % pour la transition $F = 2 \rightarrow F' = 2$. Cet effet d'élargissement est donc loin d'être négligeable.

Nous avons mesuré le déplacement lumineux pour plusieurs valeurs de défaut d'énergie $\Delta\omega$. Sur la figure (III-10) nous avons porté le déplacement dû au laser 1 pour une puissance P_1 de 60 mW en fonction de $1/\Delta\omega$. Le flux lumineux correspondant est environ de 12 kWatt/mm². La puissance du laser 2 reste fixe ($P_2 = 30$ mWatt). La variation obtenue est bien linéaire. Comme nous l'avons vu précédemment il est possible de relier le déplacement lumineux à la probabilité de transition $\Gamma_g^{(3)}$. Nous devons modifier la formule (III-25) car nous ne considérons que le déplacement dû au seul laser 1 et car les puissances P_1 et P_2 ne sont pas égales :

$$\Gamma_g^{(3)} = 4 \frac{\Delta^3}{(\Delta\omega) \Gamma_e} \times \frac{P_2}{P_1} \quad (\text{III-33})$$

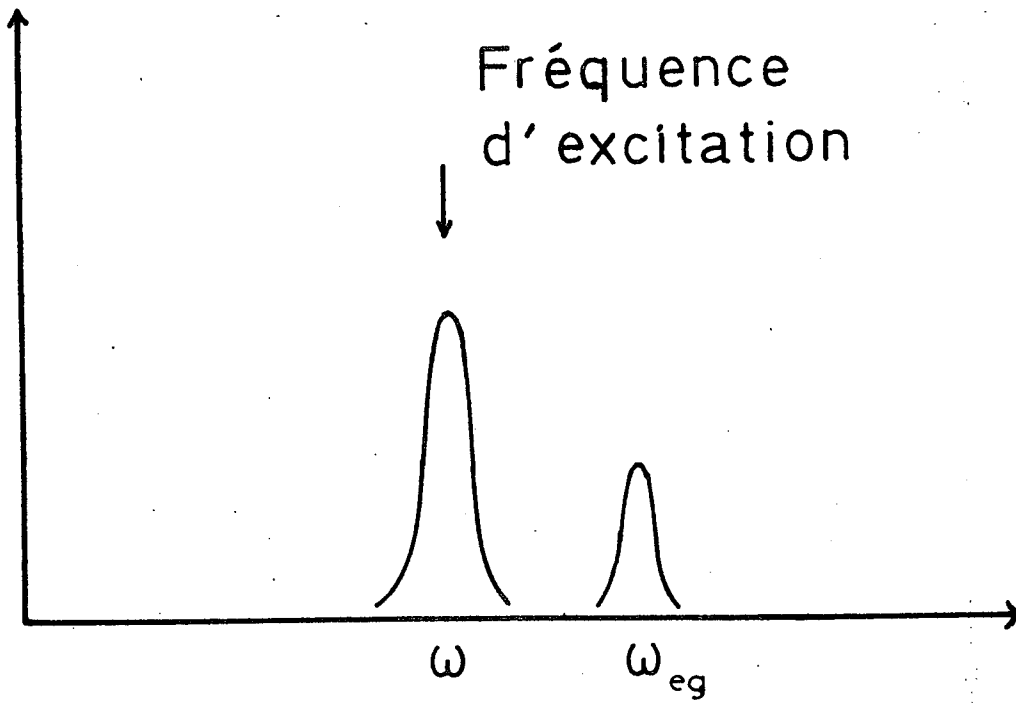
Faisons une application numérique dans le cas où le défaut d'énergie $\Delta\omega$ est de 15 GHz. Le déplacement lumineux est alors de 70 MHz environ (figure III-10). Comme précédemment nous tenons compte des diverses causes d'élargissement en remplaçant Γ_e par la largeur expérimentale, soit 60 MHz. Nous trouvons alors que la probabilité de transition $\Gamma_g^{(3)}$ vaut $5 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$, valeur qui est en bon accord avec l'estimation du paragraphe (III, 2°, c). Il faut cependant noter qu'il existe une incertitude due au fait que l'on ne mesure pas la puissance des lasers à l'intérieur de la cellule. En particulier la puissance du laser 1 lors de son second passage dans la cellule est atténuée à cause des réflexions parasites sur les faces de la cellule, ce qui peut fausser les ordres de grandeurs ci-dessus d'un facteur deux ou trois.

4°/ Effet des collisions

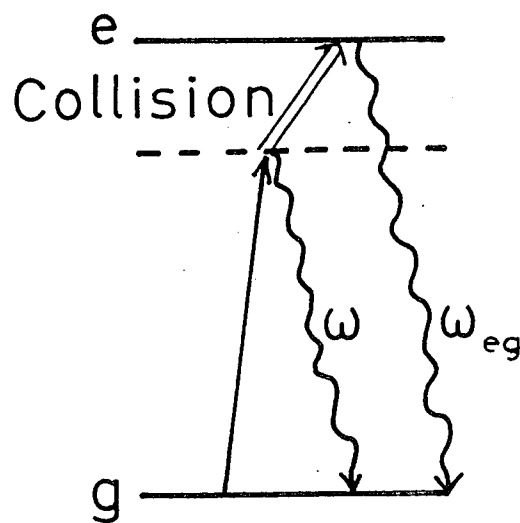
Nous avons été obligé de travailler avec une faible pression de vapeur à cause des collisions sodium - sodium. Les collisions font apparaître en effet une fluorescence parasite à la longueur d'onde de détection. Ceci s'explique simplement.

Considérons un atome interagissant avec une onde de fréquence différente de la fréquence atomique ω_{eg} . En absence de collision l'atome diffuse la lumière à la même fréquence que la lumière incidente, avec un élargissement Doppler. Cette diffusion correspond en fait à l'aile de la raie d'absorption centrée en ω_{eg} . Lorsqu'il y a des collisions, la raie d'absorption s'élargit et, sur les ailes, il y a augmentation de l'absorption. Ceci est illustré par le diagramme de la figure (III-11) qui peut s'interpréter de la manière suivante. Par absorption d'un photon d'énergie $h\omega$ l'atome transite de l'état g à l'état e . Il n'y a pas de conservation de l'énergie et l'atome ne peut rester dans l'état e que le temps $1/\Delta\omega$. Si l'atome subit alors une collision, il peut y avoir en quelque sorte transfert entre le niveau virtuel et le niveau réel. L'atome perturbateur apporte l'énergie $h\Delta\omega$ et il y a conservation de l'énergie pour l'ensemble des deux processus. C'est ce qui augmente la probabilité d'absorption. Il y a donc excitation réelle du niveau e et la lumière de fluorescence correspondante sera réémise à la fréquence ω_{eg} . Le spectre de fluorescence est donc composé de deux raies : l'une centrée en ω , correspond à la diffusion Raman, l'autre, centrée en ω_{eg} , correspond à l'élargissement par collision. Cet effet est bien connu et il connaît actuellement un regain d'intérêt, de nombreuses expériences étant maintenant possibles avec les lasers accordables (10).

Dans notre expérience cet effet est très important. Pour une pression de 10^{-3} torr de sodium la fluorescence à la fréquence ω_{eg} est déjà plus intense que la lumière diffusée à la fréquence incidente. Le signal correspondant à la transition à trois photons est alors noyé dans le bruit de la fluorescence due aux collisions. Nous avons donc travaillé avec une pression de sodium beaucoup plus faible, comprise entre 10^{-6} et 10^{-7} torr.



Spectre de fluorescence

Figure III_11

Cet effet nous a en outre empêché d'étudier l'élargissement des raies en présence d'un gaz étranger. Dans les méthodes classiques on déduit l'effet des collisions à partir de la forme des ailes des raies d'absorption. Il serait donc très intéressant d'étudier le centre du profil d'absorption dans la zone où l'approximation d'impact est valable. A priori cela n'est possible que si l'on dispose de lasers beaucoup plus puissants, de manière à pouvoir utiliser des défauts d'énergie $\Delta\omega$ plus grands : pour une même probabilité de transition à trois photons la fluorescence parasite due aux collisions serait plus petite. Notons cependant que cet effet n'existe que dans le cas où il y a émission de l'un des trois photons. Dans le cas de l'absorption de trois photons, les collisions peuvent provoquer un transfert vers les niveaux relais si les défauts d'énergie sont assez petits. Cependant cela est sans importance dans la mesure où cela n'empêche pas la détection.

C H A P I T R E I V

ÉLARGISSEMENT ET DÉPLACEMENT DES RAIES D'ABSORPTION A DEUX PHOTONS 3S-4D ET 3S-5S PAR COLLISION CONTRE DES ATOMES DE GAZ RARE

L'absorption à deux photons étant une méthode spectroscopique à haute résolution, il était nécessaire de connaître toutes les causes pouvant élargir ou déplacer les raies observées. C'est pour cette raison que nous avons été amenés à étudier l'effet des collisions en ce qui concerne l'élargissement et le déplacement des transitions à deux photons. Nous avons commencé par le cas simple des collisions sodium - gaz rare : pour chacune des deux transitions 3S-5S et 3S-4D nous avons mesuré les coefficients d'élargissement et de déplacement en présence des cinq gaz rares (He, Ne, Ar, Kr, Xe). Nous présentons ces expériences dans ce chapitre.

Du point de vue des études d'élargissement et de déplacement de raie, la spectroscopie à deux photons sans effet Doppler présente un triple avantage :

- Les raies que nous observons étant très fines, on peut mesurer le déplacement et l'élargissement des raies pour de faibles pressions de gaz rare (de l'ordre du Torr). Dans ces conditions on est bien sûr d'être en régime de collisions binaires.

- Les niveaux que l'on atteint par transition à deux photons sont des niveaux très excités et de même parité que le niveau fondamental. Ceci est intéressant dans la mesure où la plupart des expériences faites jusqu'à présent l'ont été sur les niveaux de résonance de parité opposée au niveau fondamental.

- Contrairement à ce qui se passe en absorption saturée, les collisions avec changement de vitesse ne provoquent pas l'apparition d'un fond ayant la largeur Doppler. L'étude des formes de raie est donc beaucoup plus simple.

Ce chapitre est subdivisé en trois parties. La première est consacrée au calcul théorique de la forme de raie. En utilisant le formalisme des opérateurs tensoriels irréductibles nous montrons que dans le cas général la raie d'absorption est la somme de deux lorentziennes. Dans la deuxième partie nous expliquons pourquoi les diverses composantes de structure fine ou hyperfine des transitions 3S-5S et 3S-4D du sodium doivent avoir le même élargissement et le même déplacement. Enfin, dans la troisième partie nous présentons les expériences proprement dites et les résultats de nos mesures.

I - ETUDE THEORIQUE DES FORMES DE RAIES

Nous allons étudier dans ce paragraphe la forme des courbes d'absorption à deux photons lorsqu'on tient compte des collisions. Pour cela nous appliquons aux transitions à deux photons le formalisme développé par Omont (1,2).

Lorsqu'il y a des collisions, le hamiltonien qui régit l'évolution de l'atome et du rayonnement s'écrit :

$$H = H_A + H_R + H_I + H_C \quad (\text{IV-1})$$

H_A est le hamiltonien de l'atome libre, H_R le hamiltonien du rayonnement, H_I le hamiltonien d'interaction entre l'atome et le rayonnement et enfin H_C

représente l'effet de la collision entre l'atome et le perturbateur. Une collision peut modifier l'évolution atomique de deux manières différentes :

- Le perturbateur peut agir directement sur l'état interne de l'atome par l'intermédiaire de H_C .
- Une collision peut modifier la trajectoire de l'atome, et à cause de l'effet Doppler, cela modifiera le hamiltonien H_I vu par l'atome.

Nous allons d'abord étudier cet effet.

1°/ Effet des changements de vitesse sur les formes de raies

Pour simplifier nous supposons que l'atome est soumis à deux ondes planes parfaitement monochromatiques polarisées rectilignement et de fréquence ω_L . Nous allons traiter classiquement le mouvement de l'atome : l'atome suit une trajectoire en ligne brisée, chaque collision modifiant la direction de la vitesse de l'atome. Au cours de ce mouvement l'atome voit le champ électrique $E(t)$. Comme nous l'avons vu au chapitre I (§ II), la probabilité de transition à deux photons s'exprime à partir de la fonction $A(\Omega)$ définie par (I-20). Nous pouvons écrire $A(\Omega)$ en fonction de $E(t)$:

$$A(\Omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E(t)^2 e^{i\Omega t} dt$$

Pour une trajectoire rectiligne, $A(\Omega)$ est une fonction de Dirac centrée en $2\omega_L$. Dans le cas d'une trajectoire quelconque nous avons :

$$E(t) = E_0 e^{-i\omega_L t - ikZ(t)} + E_0 e^{-i\omega_L t + ikZ(t)} \quad (\text{IV-2})$$

D'où :

$$E(t)^2 = E_0^2 e^{-2i\omega_L t} \left(2 + e^{-2ikZ(t)} + e^{+2ikZ(t)} \right) \quad (\text{IV-3})$$

Les deux termes qui dépendent de $Z(t)$ dans l'expression de $E(t)^2$ correspondent à l'absorption de deux photons de la même onde progressive. Si on se limite à la transition sans effet Doppler, $E(t)^2$ reste rigoureusement indépendant de la trajectoire et $A(\Omega)$ est encore une fonction de Dirac centrée en $2\omega_L$.

Les changements de vitesse ne déforment donc pas les raies d'absorption à deux photons. C'est un résultat tout à fait remarquable qui se comprend bien dans la mesure où toutes les classes de vitesses participent à la transition. Il est intéressant d'examiner le domaine de validité de ce résultat. Comme nous l'avons vu au chapitre I, le formalisme que nous venons d'utiliser n'est valable que si les transitions à un photon sont interdites. Ceci implique en particulier que le défaut d'énergie $\Delta\omega_r$ (chapitre I - figure I-3) soit grand devant la largeur spectrale S de l'onde électromagnétique vue par l'atome. Lors d'une collision avec changement de vitesse, l'atome voit avant et après la collision deux ondes de fréquences différentes, la durée du changement de fréquence étant de l'ordre de la durée de la collision τ_c . Dans ces conditions la largeur spectrale S de l'onde vue par l'atome est de l'ordre de $1/\tau_c$. La conditions de validité du résultat que nous avons obtenu ci-dessus est donc :

$$\Delta\omega_r \gg \frac{1}{\tau_c} \quad (\text{IV-4})$$

Ceci signifie que le temps d'absorption de deux photons $1/\Delta\omega_r$ doit être très petit devant la durée de la collision. Sinon l'atome peut subir une collision entre le premier et le second photon, ce qui fera réapparaître un fond ayant la largeur Doppler. Pour un temps de collision τ_c de l'ordre de 10^{-12} s, la condition (IV-4) est vérifiée si $\Delta\omega_r/2\pi$ est très grand devant 150 GHz environ.

A ce niveau il peut être intéressant de faire une comparaison avec la spectroscopie d'absorption saturée. En absorption saturée les atomes sont soumis de manière résonnante à deux ondes se propageant en sens inverses : l'onde aller interagit avec les atomes de vitesse V_z et l'onde retour avec ceux de vitesse $-V_z$ (figure IV-1).

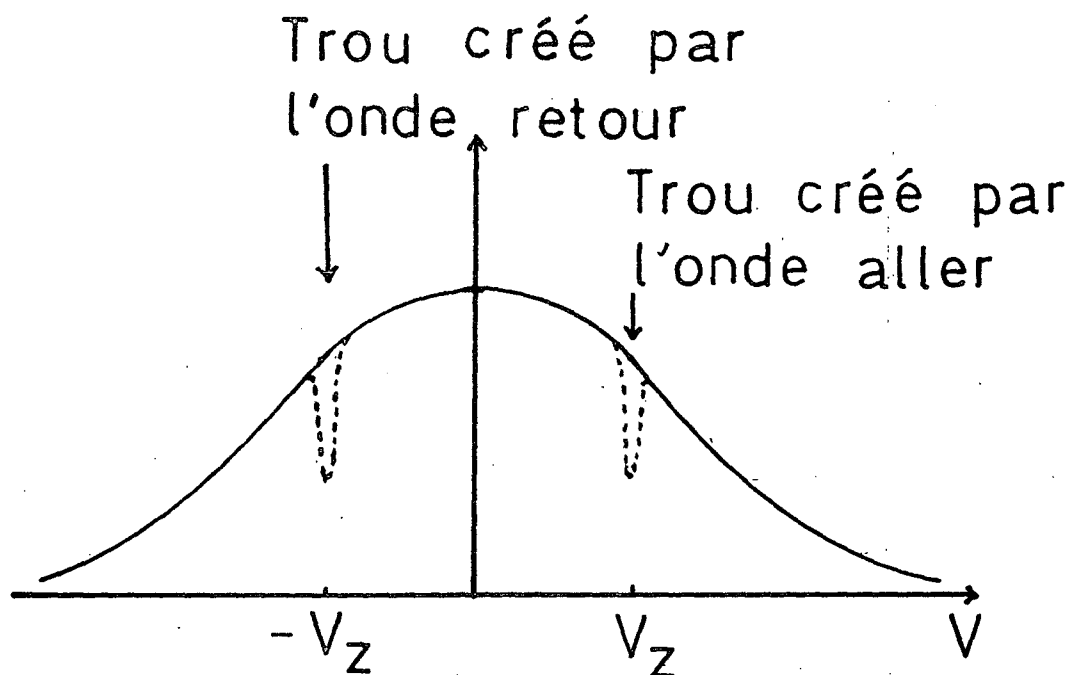


Figure IV-1

Le signal d'absorption saturée apparaît lorsque les deux faisceaux interagissent avec les mêmes atomes, c'est-à-dire lorsqu'ils interagissent avec les atomes de vitesse nulle. Lorsqu'il y a des collisions, la situation est différente. En effet un atome de vitesse V_z peut subir une première interaction avec l'onde aller, puis à cause d'une collision, changer de vitesse de $+V_z$ à $-V_z$ et enfin subir une dernière interaction avec l'onde retour. Dans ces conditions les deux faisceaux peuvent interagir avec les mêmes atomes lorsqu'on est hors de résonance, ce qui provoque l'apparition d'un fond ayant la largeur Doppler. Ceci est possible parce que le *temps entre deux interactions* avec l'onde électromagnétique (de l'ordre de la durée de vie de l'état excité) est *grand devant la durée d'une collision*. Nous voyons donc qu'en absorption saturée la situation est exactement l'inverse de ce qui se passe pour l'absorption à deux photons.

Notons enfin que le raisonnement précédent n'est exact que dans le cas de deux ondes planes indéfinies. Dans le cas où il faut tenir compte du temps de traversée du faisceau les formes de raies que nous avons étudiées au chapitre I (§ III) seront modifiées. En particulier pour de fortes pres-

sions de gaz l'atome pourra rester bloqué à l'intérieur du faisceau. L'élargissement correspondant au temps de traverser du faisceau sera diminué par effet Dicke ⁽³⁾. Cependant les pressions nécessaires pour observer ce rétrécissement sont telles que l'élargissement par collision est alors beaucoup plus grand que l'élargissement dû au temps de traversée du faisceau.

Nous allons maintenant étudier l'effet direct du perturbateur sur l'état interne de l'atome.

2°/ Le régime d'impact

Nous nous plaçons dans le cadre de l'approximation d'impact. Pour ceci nous devons supposer que :

- La relaxation s'effectue au moyen de collisions binaires, bien séparées dans le temps, la durée τ_c d'une collision étant très petite par rapport au temps entre deux collisions.
- La durée de la collision τ_c est très petite devant le temps d'évolution de l'atome en absence de perturbateur : pendant la collision on peut alors négliger cette évolution libre et ne tenir compte que du hamiltonien d'interaction avec le perturbateur H_C .

Dans le cas de l'absorption à *un* photon, le temps d'évolution libre est soit la durée de vie $1/\Gamma_e$ de l'état excité lorsqu'on se trouve à résonance, soit $1/\delta\omega$, $\delta\omega$ étant l'écart entre la fréquence incidente ω_L et la fréquence atomique ω_{eg} . L'approximation d'impact est alors valable si :

$$\tau_c \ll \frac{1}{\Gamma_e}, \quad \frac{1}{\delta\omega} \tag{IV-5}$$

Notons que si l'on s'intéresse à la totalité de la forme de la raie d'absorption $\delta\omega$ est de l'ordre de la largeur de la raie d'absorption. Or cette largeur correspond en gros à la fréquence des collisions, c'est-à-dire à l'inverse du temps *entre* deux collisions. La conditions (IV-5) signifie alors

que le temps de collision τ_c est très petit devant le temps entre deux collisions successives. Nous retrouvons ainsi l'hypothèse de collisions binaires.

Dans le cas de l'absorption à deux photons, la situation est plus compliquée. En effet l'évolution libre (en absence de collisions) est régie par deux temps caractéristiques :

- Le temps d'absorption des deux photons $1/\Delta\omega_r$, où $\Delta\omega_r$ est le défaut d'énergie (chapitre I, figure I-3) : c'est le temps d'évolution dans l'état relais.
- Le temps d'évolution de l'atome dans l'état excité $1/\Gamma_e$ ou $1/\delta\omega$, selon que l'on se trouve ou non à résonance ($\delta\omega$ est l'écart à résonance définie par I-6).

Précisons les ordres de grandeur dans le cas qui nous intéresse des transitions 3S-5S et 3S-4D du sodium. Nous avons :

$$\frac{1}{\Delta\omega_r} \sim 2 \cdot 10^{-14} \text{ s}, \quad \tau_c \sim 10^{-12} \text{ s}, \quad \frac{1}{\Gamma_e} \sim 10^{-7} \text{ s}, \quad \frac{1}{\delta\omega} \sim 10^{-9} \text{ s}$$

Soit :

$$\frac{1}{\Delta\omega_r} \ll \tau_c \ll \frac{1}{\Gamma_e}, \quad \frac{1}{\delta\omega} \quad (\text{IV-6})$$

A priori nous ne sommes donc pas dans le régime d'impact, le temps d'absorption des deux photons $1/\Delta\omega_r$ étant très petit devant la durée de la collision τ_c . Cependant la difficulté n'est qu'apparente : le fait même que $1/\Delta\omega_r$ soit très petit devant τ_c permet de faire apparaître l'opérateur transition à deux photons comme nous venons de le voir (chapitre IV - § I - 1°). Nous pouvons appliquer dans ces conditions le formalisme développé au chapitre I (§ II) : l'atome est en fait soumis au hamiltonien effectif H_I' , analogue pour les transitions à deux photons à l'hamiltonien dipolaire électrique pour les transitions à un photon :

$$H_I' = Q_{\epsilon\epsilon}^S E(t)^2$$

Si l'on se restreint au niveau fondamental g et au niveau excité e (en excluant le niveau relais r), l'évolution de l'atome en absence de collision est uniquement régie par cet hamiltonien H_I . Les temps d'évolution correspondants sont alors seulement $1/\Gamma_e$ et $1/\delta\omega$. Les inégalités (IV-6) montrent alors que l'approximation d'impact est vérifiée de manière excellente. Nous voyons que ce raisonnement repose sur le fait que l'opérateur transition à deux photons permet de faire disparaître l'évolution à l'intérieur de l'état relais r .

Lorsque l'on est dans le régime d'impact, l'évolution de la matrice densité atomique se ramène à une équation pilote qui s'exprime au moyen de la matrice de relaxation Φ . A l'aide de cette équation pilote, nous allons maintenant calculer exactement la forme des raies d'absorption à deux photons en présence de collisions. Cependant nous rappelons d'abord rapidement quelques propriétés de la matrice de relaxation Φ de manière à préciser les notations.

3°/ Matrice de relaxation Φ

La matrice de relaxation Φ est un opérateur agissant dans l'espace de Liouville. La relaxation de la matrice densité ρ s'écrit :

$$\frac{d}{dt} |\rho\rangle\rangle = - \Phi |\rho\rangle\rangle \quad (\text{IV-7})$$

Le calcul de la matrice Φ en fonction des paramètres caractérisant une collision donnée sera fait au chapitre VI. Nous nous contenterons pour l'instant de dire que, la distribution des vitesses atomiques étant isotrope, la matrice de relaxation Φ est un scalaire de l'espace de Liouville. Nous choisissons comme base de l'espace de Liouville les opérateurs tensoriels irréductibles $J_{\alpha\beta T}^k$ définis au chapitre I (formule I-12). La matrice de relaxation étant un scalaire, nous avons :

$$\langle\langle J_{\alpha\beta T}^k | \Phi | J_{\gamma\delta T}^{k'} \rangle\rangle = \delta_{kk'} \delta_{qq'} \frac{J_{\alpha\beta}^k}{J_{\gamma\delta}^k} \Phi^k \quad (\text{IV-8})$$

La connaissance des nombres $\frac{J_{\alpha\beta}^k}{J_{\gamma\delta}^k} \Phi^k$ détermine complètement la matrice de relaxation.

Connaissant la matrice de relaxation Φ , nous pouvons maintenant écrire l'équation d'évolution de la matrice densité ρ :

$$\frac{d}{dt} |\rho\rangle\rangle = -i L_0 |\rho\rangle\rangle - G |\rho\rangle\rangle \quad (\text{IV-9})$$

L'opérateur G tient compte à la fois de la relaxation par collisions Φ et de l'émission spontanée Γ :

$$G = \Phi + \Gamma \quad (\text{IV-10})$$

L_0 est l'opérateur de l'espace de Liouville correspondant au hamiltonien H_0 . Pour tout opérateur X on a :

$$L_0 |X\rangle\rangle = \frac{1}{\hbar} |[H_0, X]\rangle\rangle \quad (\text{IV-11})$$

Les états $|e\rangle\langle g|$ sont les états propres de L_0 avec la valeur propre ω_{eg} .

$$L_0 |e\rangle\langle g| = \frac{1}{\hbar} H_0 |e\rangle\langle g| - |e\rangle\langle g| H_0 \frac{1}{\hbar} = (\omega_e - \omega_g) |e\rangle\langle g| = \omega_{eg} |e\rangle\langle g|$$

Nous sommes maintenant en mesure d'étudier la forme de la raie d'absorption.

4°/ Calcul de la fonction de corrélation de l'opérateur transition à deux photons

Dans le cas des transitions à un photon le profil d'absorption s'obtient à partir de la fonction de corrélation du dipole électrique. Si $P(\omega_L)$ est la puissance absorbée à la fréquence ω_L on a ⁽¹⁾ :

$$P(\omega_L) \sim \text{Réel} \int_0^\infty e^{i\omega_L \tau} \text{tr} \rho_g \tilde{D}(0) \tilde{D}^+(-\tau) d\tau \quad (\text{IV-12})$$

ρ_g étant la matrice densité dans l'état fondamental :

$$\rho_g = \frac{1}{2J_g + 1} \sum_{m_g} |J_g m_g\rangle\langle J_g m_g| \quad (\text{IV-13})$$

$\hat{D}(t)$ étant l'opérateur dipolaire électrique en représentation d'interaction. Dans cette représentation on associe à tout opérateur $|X\rangle\rangle$ (vecteur de l'espace de Liouville) un opérateur $|\hat{X}\rangle\rangle$ au moyen d'un opérateur de l'espace de Liouville A :

$$|\hat{X}\rangle\rangle = A |X\rangle\rangle$$

L'opérateur A est un opérateur dépendant du temps choisi de manière telle, qu'en absence d'interaction entre l'atome et le rayonnement ($H_I = 0$), l'opérateur $|\hat{\rho}\rangle\rangle$ n'évolue pas (ρ est la matrice densité du système). Compte tenu de l'équation d'évolution de $|\rho\rangle\rangle$ (équation IV-9), on vérifie facilement que :

$$A = e^{(iL_0 + G)t} \quad (\text{IV-14})$$

Pour les transitions à un photon, le profil d'absorption s'écrit donc :

$$P(\omega_L) \sim \text{Réal} \int_0^\infty e^{i\omega_L \tau} \text{tr} \rho_g D e^{-(iL_0 + G)\tau} D^+ d\tau \quad (\text{IV-15})$$

Dans le cas des transitions à deux photons le profil d'absorption est donné par une expression analogue. En effet, dans la mesure où le temps d'absorption de deux photons $1/\Delta\omega_r$ est très court par rapport à la durée τ_c de la collision, la relaxation n'a pas le temps d'agir pendant l'absorption à deux photons. Le calcul de l'absorption à deux photons est alors analogue à celui de l'absorption à un photon, l'opérateur dipolaire électrique étant simplement remplacé par l'opérateur transition à deux photons. Le profil d'absorption à deux photons s'écrit donc :

$$P(\omega_L) \sim \text{Réal} \int_0^\infty e^{2i\omega_L \tau} \text{tr} \rho_g Q_{\epsilon\epsilon}^S(o) Q_{\epsilon\epsilon}^{S+}(-\tau) d\tau \quad (\text{IV-16})$$

Ce résultat est cohérent avec celui que nous avons établi dans l'appendice A dans le cas simple où la seule cause de relaxation est l'émission spontanée (équation A-31). Pour le démontrer dans le cas général il est nécessaire d'utiliser le formalisme de la matrice densité. Ce calcul a déjà été fait par E. GIACOBINO⁽⁴⁾ qui donne directement le profil d'absorption. Pour établir ce résultat il est nécessaire de supposer que la matrice de relaxa-

tion G est diagonale en ce qui concerne les cohérences optiques, c'est-à-dire que l'on a, si $\omega_\alpha \neq \omega_\beta$:

$$\langle\langle J_\alpha^{J_\beta} T_k | \Phi | J_\gamma^{J_\delta} T_{k'} \rangle\rangle = \delta_{\alpha\gamma} \delta_{\beta\delta} \delta_{kk'} \delta_{qq'} J_\alpha^{J_\beta} J_\gamma^{J_\delta} \Phi^k \quad (\text{IV-17})$$

L'approximation séculaire permet de justifier cette hypothèse. En effet dans cette approximation la relaxation ne couple que les termes de la matrice densité évoluant à la même fréquence. On doit donc avoir :

$$\omega_{\alpha\beta} = \omega_{\gamma\delta} \quad (\text{IV-18})$$

Dans le cas général où les niveaux d'énergie sont répartis de manière "aléatoires", cette condition impose que :

$$\alpha = \gamma \quad \beta = \delta$$

(Pour les cohérences optiques on a toujours $\alpha \neq \beta$, donc $\omega_{\alpha\beta} \neq 0$). Par contre s'il existait des états d'énergie tels que la condition (IV-18) soit vérifiée, il pourrait y avoir des transferts de cohérences qui pourraient modifier la forme des raies d'absorption. Nous supposons donc que nous ne sommes pas dans ce cas là.

Le raisonnement que nous avons fait pour l'opérateur dipolaire électrique peut s'appliquer aussi à l'opérateur transition à deux photons. L'expression IV-16 s'écrit donc :

$$P(\omega_L) \sim \text{Réel} \int_0^\infty e^{2i\omega_L \tau} \text{tr} \rho_g Q_{\epsilon\epsilon}^S e^{-(iL_0 + G)\tau} Q_{\epsilon\epsilon}^{S+} d\tau \quad (\text{IV-19})$$

Si on s'intéresse à une transition entre un état g de projecteur P_g et un état e de projecteur P_e , on a :

$$P(\omega_L) \sim \text{Réel} \int_0^\infty \frac{1}{2J_g + 1} \text{tr} P_g Q_{\epsilon\epsilon}^S e^{-[i(L_0 - 2\omega_L) + G]\tau} P_e Q_{\epsilon\epsilon}^{S+} P_g d\tau \quad (\text{IV-20})$$

L'opérateur $P_e Q_{\epsilon\epsilon}^S P_g$ n'est rien d'autre que l'opérateur ${}^{eg}Q_{\epsilon\epsilon}^S$ défini au premier chapitre. En le considérant comme un vecteur de l'espace de Liouville,

on peut reprendre la décomposition sur les opérateurs tensoriels irréductibles (équation I-13) :

$$|^{eg}Q_{\epsilon\epsilon}^S\rangle\rangle = \sum_{k=0,2} \frac{\langle eJ_e || Q^k || gJ_g \rangle}{\sqrt{2k+1}} \sum_q a_q^k |^{J_e J_g} T_q^k\rangle\rangle \quad (IV-21)$$

Les vecteurs $|^{J_e J_g} T_q^k\rangle\rangle$ sont des vecteurs propres de L_0 avec la valeur propre ω_{eg} . Comme nous l'avons vu ci-dessus, ce sont aussi des vecteurs propres de G dans la mesure où il n'y a pas de transfert de cohérence. Nous avons donc :

$$G |^{J_e J_g} T_q^k\rangle\rangle = G_{eg}(k) |^{J_e J_g} T_q^k\rangle\rangle \quad (IV-22)$$

où :

$$G_{eg}(k) = G'_{eg}(k) + i G''_{eg}(k) = \frac{J_e J_g}{J_e J_g} \phi^k + \frac{1}{2} (\Gamma_e + \Gamma_g) \quad (IV-23)$$

Le calcul de l'expression (IV-20) est alors immédiat :

$$P(\omega_L) \sim \sum_{k=0,2} \frac{G'_{eg}(k)}{[G'_{eg}(k)]^2 + [\omega_{eg} + G''_{eg}(k) - 2\omega_L]^2} \times \frac{|\langle eJ_e || Q^k || gJ_g \rangle|^2}{(2J_g + 1)(2k + 1)} \sum_q |a_q^k|^2 \quad (IV-24)$$

La raie d'absorption est donc la somme de deux lorentziennes. Leurs largeurs correspondent à la relaxation du scalaire optique ($k=0$) et du quadripole optique ($k=2$). Ce résultat est analogue à celui obtenu par Fiutak et Van Kranendonk ⁽⁵⁾ pour l'effet Raman.

Cependant, dans de nombreux cas, l'opérateur transition à deux photons est de rang bien défini (chapitre I - § I, 3°). Le profil d'absorption est alors simplement lorentzien. C'est en particulier le cas pour les transitions 3S-5S (opérateur scalaire) et 3S-4D (opérateur quadripolaire) de l'atome de sodium.

II - INFLUENCE D'UNE PETITE STRUCTURE FINE OU HYPERFINE

Comme nous l'avons vu au chapitre II, les transitions à deux photons 3S-4D et 3S-5S se décomposent en plusieurs composantes de structure fine ou de structure hyperfine. Nous devons donc examiner en détail l'influence que peuvent avoir ces structures (fine ou hyperfine) lorsque l'atome subit des collisions. Nous allons utiliser pour cela le formalisme développé par Omont ⁽²⁾ et Faroux ⁽⁶⁾. Nous présentons d'abord le problème d'un point de vue physique avant de calculer les coefficients d'élargissement des diverses composantes de structure fine ou hyperfine.

1°/ Hypothèses physiques

Nous considérons un atome qui possède une petite structure fine ou hyperfine ΔE . Au cours d'une collision, l'atome est soumis au hamiltonien H

$$H = H_0 + H_S + H_C \quad (\text{IV-25})$$

H_0 est le hamiltonien en absence de structure (fine ou hyperfine) et de collisions, H_S est le hamiltonien de structure fine ou hyperfine, H_C le hamiltonien d'interaction entre l'atome et le perturbateur.

Nous supposons que le hamiltonien H_C est d'origine purement électrostatique et qu'il n'a aucune action sur les spins électroniques ou nucléaires. Dans ces conditions les spins électroniques ou nucléaires n'évoluent que sous l'action du hamiltonien H_S , leur temps d'évolution étant typiquement $\hbar/\Delta E$. Si la structure ΔE est assez petite, le spin n'a pas le temps d'évoluer pendant la durée de la collision τ_c et on peut faire le calcul de collision comme s'il n'y avait pas de spin. La condition de validité de cette hypothèse s'écrit :

$$\Delta E \ll \frac{\hbar}{\tau_c} \quad (\text{IV-26})$$

Cette condition est bien vérifiée dans le cas des niveaux $3S_{1/2}$, $5S_{1/2}$ et 4D du sodium. Les structures hyperfines des niveaux $3S_{1/2}$ et $5S_{1/2}$ sont

respectivement de 1772 MHz et 155 MHz ; la structure fine du niveau 4D est de 1028 MHz. Nous pouvons estimer le temps de collision τ_c à partir de la vitesse de l'atome (1000 m/s environ) et de la taille de l'atome (pour le niveau 5S on a par exemple $2n^2 a_0 \approx 25 \text{ \AA}$). Nous obtenons alors :

$$\frac{1}{\tau_c} \approx 10^{12} \text{ s}^{-1} \quad \text{soit} \quad \frac{1}{2\pi \tau_c} = 10^5 \text{ MHz.}$$

La condition (IV-21) est donc bien vérifiée dans les cas qui nous intéressent. Pour faire les calculs il suffit donc, dans le cas d'une petite structure fine, de découpler \vec{L} et \vec{S} avant la collision et de les recoupler après. Dans le cas d'une petite structure hyperfine on fait de même en remplaçant \vec{L} par \vec{J} et \vec{S} par \vec{I} . Nous sommes donc ramenés à un simple problème d'algèbre tensorielle.

2°/ Expression des coefficients de relaxation

Nous allons examiner ici le cas d'une petite structure fine. Les résultats sont analogues lorsqu'il s'agit d'une structure hyperfine. Nous supposons connue l'action de la matrice de relaxation Φ sur la base découplée de l'espace de Liouville :

$$| \begin{smallmatrix} L_\alpha L_\beta \\ T \end{smallmatrix} k \gg \otimes | \begin{smallmatrix} S \ S \\ T \end{smallmatrix} k' \gg$$

Ces opérateurs tensoriels sont définis par une expression analogue à la formule (I-12). Dans cette base les éléments de matrice de Φ s'écrivent :

$$\langle \langle \begin{smallmatrix} L_\alpha L_\beta \\ T \end{smallmatrix} k \otimes \begin{smallmatrix} S \ S \\ T \end{smallmatrix} k' | \Phi | \begin{smallmatrix} L_\gamma L_\delta \\ T \end{smallmatrix} k'' \otimes \begin{smallmatrix} S \ S \\ T \end{smallmatrix} k''' \rangle \rangle = \delta_{kk''} \delta_{k'''k'} \delta_{qq''} \delta_{q'q'''} \quad (IV-27)$$

Nous avons utilisé le fait que Φ est un opérateur scalaire de l'espace de Liouville et qu'il n'agit pas sur l'espace des spins. C'est pourquoi les

coefficients $\begin{matrix} L_\alpha L_\beta \\ L_\gamma L_\delta \end{matrix} \Phi^k$ sont indépendants de k' , q et q' .

Lorsqu'on tient compte de la structure fine, L et S sont couplés pour donner J . Expérimentalement nous allons donc mesurer les éléments de matrice de Φ dans la base couplée de l'espace de Liouville $\begin{matrix} J_\alpha J_\beta \\ T \quad K \\ Q \end{matrix}$. Ces éléments de matrice s'écrivent :

$$\langle\langle \begin{matrix} J_\alpha J_\beta \\ T \quad K \\ Q \end{matrix} | \Phi | \begin{matrix} J_\gamma J_\delta \\ T \quad K' \\ Q' \end{matrix} \rangle\rangle = \delta_{KK'} \delta_{QQ'} \begin{matrix} J_\alpha J_\beta \\ J_\gamma J_\delta \end{matrix} \Phi^K \quad (\text{IV-28})$$

Pour passer de l'expression (IV-27) à l'expression (IV-28), il faut faire un changement de base de l'espace de Liouville. Les coefficients de cette transformation unitaire sont les coefficients 9-j de Wigner (Messiah ⁽⁷⁾, app. C, équ. 40-a), (Faroux ⁽⁶⁾, équ. IV-6 et IV-7), (Omont ⁽²⁾, équ. 2-28) :

$$\begin{matrix} J_\alpha J_\beta \\ T \quad K \\ Q \end{matrix} = \sum_{\substack{k \quad k' \\ q \quad q'}} \sqrt{(2J_\alpha+1)(2J_\beta+1)(2k+1)(2k'+1)} \langle kk' \quad qq' | KQ \rangle \times \\ \left\{ \begin{matrix} L_\alpha & S & J_\alpha \\ L_\beta & S & J_\beta \\ k & k' & K \end{matrix} \right\} \begin{matrix} L_\alpha L_\beta \\ T \quad k \\ q \end{matrix} \otimes \begin{matrix} S \quad S \\ T \quad k' \\ q' \end{matrix} \quad (\text{IV-29})$$

Il en résulte pour les éléments de matrice de Φ :

$$\begin{matrix} J_\alpha J_\beta \\ J_\gamma J_\delta \end{matrix} \Phi^K = \sum_{k \quad k'} \sqrt{(2J_\alpha+1)(2J_\beta+1)(2J_\gamma+1)(2J_\delta+1)} (2k+1)(2k'+1) \times \\ \left\{ \begin{matrix} L_\alpha & S & J_\alpha \\ L_\beta & S & J_\beta \\ k & k' & K \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} L_\gamma & S & J_\gamma \\ L_\delta & S & J_\delta \\ k & k' & K \end{matrix} \right\} \begin{matrix} L_\alpha L_\beta \\ L_\gamma L_\delta \end{matrix} \Phi^k \quad (\text{IV-30})$$

Nous allons maintenant appliquer ces résultats à l'étude de l'élargissement des transitions à deux photons de l'atome de sodium.

3°/ Élargissement des composantes des raies d'absorption à deux photons

Dans le cas de l'atome de sodium nous avons à la fois un spin électronique \vec{S} et un spin nucléaire \vec{I} . D'après ce que nous avons vu au début de ce chapitre (formule IV-23), le coefficient d'élargissement $G_{eg}(K)$ pour

une transition entre les niveaux (L_g, J_g, F_g) et (L_e, J_e, F_e) s'écrit :

$$G_{eg}(K) = \frac{1}{2} (\Gamma_e + \Gamma_g) + \frac{F_e F_g}{F_e F_g} \phi^K \quad (\text{IV-31})$$

En appliquant deux fois de suite la formule (IV-30) avec $L_\alpha = L_\gamma = L_e$ et $L_\beta = L_\delta = L_g$, nous obtenons :

$$G_{eg}(K) = \frac{1}{2} (\Gamma_e + \Gamma_g) + \sum_{K_J, k''} (2F_e+1)(2F_g+1)(2J_e+1)(2J_g+1)(2K_J+1)(2k''+1) \\ \times \left\{ \begin{matrix} J_e & I & F_e \\ J_g & I & F_g \\ K_J & k'' & K \end{matrix} \right\}^2 \sum_{k, k'} (2k+1)(2k'+1) \left\{ \begin{matrix} L_e & S & J_e \\ L_g & S & J_g \\ k & k' & K_J \end{matrix} \right\}^2 \frac{L_e L_g}{L_e L_g} \phi^k \quad (\text{IV-32})$$

Dans le cas des transitions 3S-5S et 3S-4D l'état initial g a un moment cinétique orbital nul ($L_g = 0$). La sommation sur k se réduit alors à un seul terme ($k = L_e$). On peut alors écrire :

$$G_{eg}(K) = \frac{1}{2} (\Gamma_e + \Gamma_g) + (2F_e + 1)(2F_g + 1)(2J_e + 1)(2J_g + 1) \frac{L_e L_g}{L_e L_g} \phi^{L_e} \\ \times \sum_{K_J, k''} (2K_J+1)(2k''+1) \left\{ \begin{matrix} J_e & I & F_e \\ J_g & I & F_g \\ K_J & k'' & K \end{matrix} \right\}^2 \sum_{k, k''} (2k+1)(2k'+1) \left\{ \begin{matrix} L_e & S & J_e \\ L_g & S & J_g \\ k & k' & K_J \end{matrix} \right\}^2 \quad (\text{IV-33})$$

Les sommations sur k, k', k'' et K_J ne sont alors rien d'autre que les relations d'orthogonalité des symboles 9-j⁽⁷⁾. On obtient finalement :

$$G_{eg}(K) = \frac{1}{2} (\Gamma_e + \Gamma_g) + \frac{L_e L_g}{L_e L_g} \phi^{L_e} \quad (\text{IV-34})$$

Cette expression étant indépendante des nombres quantiques J et F , toutes les composantes de structure fine et hyperfine auront le même élargissement. Rappelons les deux hypothèses qui nous ont permis d'obtenir ce résultat :

- La durée de la collision τ_c doit être très petite devant l'inverse des structures fines ou hyperfines considérées (condition IV-26).

- Le moment cinétique orbital de l'un des deux niveaux de la transition est nul. S'il n'en était pas ainsi les largeurs des différentes composantes dépendraient de plusieurs paramètres orbitaux $\begin{matrix} L_e L_g \\ L_e L_g \end{matrix} \phi^k$ et elles ne seraient plus égales.

En conclusion nous pouvons dire que les deux composantes de la transition 3S-5S d'une part et les quatre composantes de la transition 3S-4D d'autre part auront les mêmes élargissements par collision que nous noterons respectivement $\Phi^0(3S-5S)$ et $\Phi^2(3S-4D)$. Ces deux coefficients sont indépendants des structures fines et hyperfines et on les calculera au chapitre VI en négligeant le spin électronique et le spin nucléaire.

III - ETUDE EXPERIMENTALE DE L'ELARGISSEMENT DES TRANSITIONS 3S-5S et 3S-4D DU SODIUM

Nous présentons maintenant les expériences d'élargissement et de déplacement des raies d'absorption à deux photons que nous avons faites sur l'atome de sodium en présence de gaz rare. Par rapport au montage expérimental décrit au chapitre II (§ II - 1°) nous avons dû faire deux modifications. D'une part nous avons utilisé une cellule montée sur un banc de pompage de manière à pouvoir faire varier à volonté la pression de gaz étranger. D'autre part l'emploi d'une cellule de référence nous a permis de mesurer les déplacements des raies avec une bonne précision. Nous allons donc décrire ces deux modifications avant de donner les résultats obtenus.

1° / Le banc de pompage et la mesure de pression

Pour faire des études de collisions dans une vapeur on peut soit utiliser un banc de pompage, soit utiliser des cellules scellées avec diverses pressions de gaz étranger. Nous avons choisi la première solution pour la raison suivante. Comme nous l'avons vu au chapitre II les cellules à

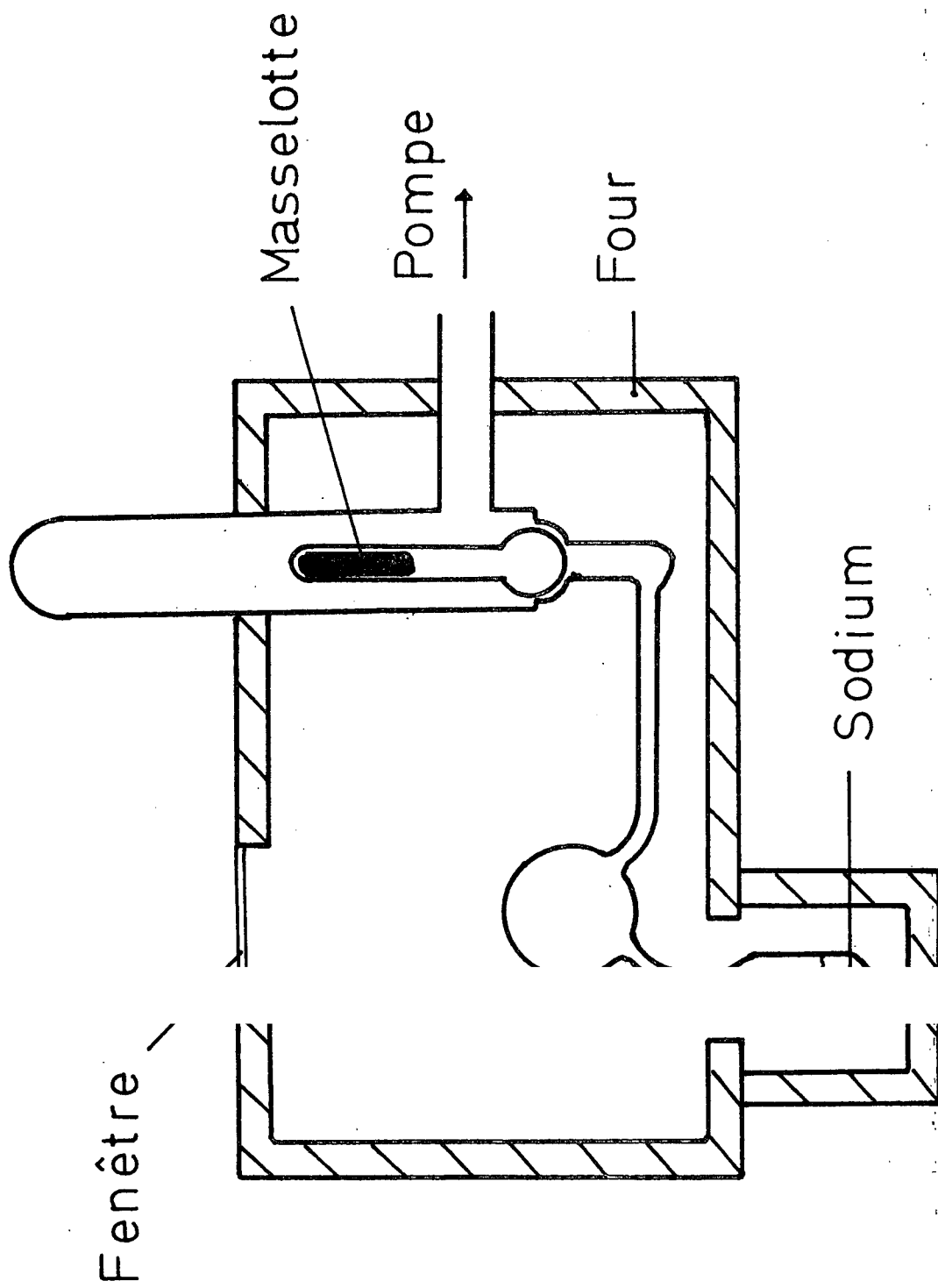


Schéma : la cellule à sodium
Figure IV-2

sodium que nous employons sont faites dans un verre spécial (verre Corning 1720) qui n'est attaqué par le sodium qu'à partir de 300°C environ. Ces cellules ont été fabriquées à l'atelier de verrerie du laboratoire par Monsieur G. Flory. La fabrication de ces cellules demande beaucoup de soin car ce verre spécial est très difficile à travailler. En particulier la soudure des fenêtres se fait par adhérence optique et en portant ensuite la cellule à une température très légèrement inférieure à la température de fusion (environ 5°C en dessous). Dans ces conditions chaque cellule demande beaucoup de temps et il était exclu d'en fabriquer un grand nombre. C'est pour cela que nous avons utilisé une cellule montée sur un banc de pompage. De plus il semble qu'il se produise un échange chimique entre le potassium contenu dans le verre Corning 1720 et le sodium. Les cellules scellées peuvent donc s'enrichir à la longue en potassium et contenir une fraction notable de potassium. Les collisions sodium-potassium pourraient alors élargir les raies d'absorption à deux photons. Le banc de pompage permet de maintenir un vide correct à l'intérieur de la cellule.

Dans la construction du banc de pompage nous avons prévu un système pour maintenir une pression constante de sodium dans la cellule au cours d'un enregistrement. Nous utilisons pour cela une sorte de "robinet" formé par une petite sphère en verre rodé qui vient boucher l'orifice rodé de la cellule (Figure IV-2). Cette sphère est soudée à une tige contenant une masselotte et est ainsi manipulable de l'extérieur à l'aide d'un aimant. Pour éviter que le sodium ne se dépose dessus, l'ensemble du système est placé à l'intérieur du four à une température supérieure à celle du queusot de la cellule.

Nous mesurons la pression de gaz étranger à l'aide d'une jauge de Mac-Leod. Le volume de référence peut être comprimé d'un facteur variant de 100 à 100.000. La hauteur de la colonne de mercure utilisable est d'environ 50 cm. Dans la gamme de pression où nous travaillons (0,1 Torr à 4 Torr) la précision de cette jauge est de l'ordre de 1 à 2 %. Cependant nous faisons la mesure à la température ambiante T_0 alors que la cellule est placée à la température T . Pour connaître le nombre d'atomes par unité de volume dans la cellule nous devons donc faire une correction. Nous supposons pour cela que nous sommes en régime visqueux, c'est-à-dire qu'il y a prédominance des

chocs entre atomes par rapport aux chocs contre les parois. Le cas le plus défavorable vis à vis de cette hypothèse est celui de l'hélium : à une pression de 0,1 Torr le libre parcours moyen est de l'ordre de 2 mm (Surugue ⁽⁸⁾), le diamètre du tube au niveau duquel se fait la transition de T_0 à T étant de 1 cm environ. Dans ces conditions nous pouvons écrire que la pression est constante. Si n_0 est la densité d'atomes au niveau de la jauge et n la densité à l'intérieur de la cellule, on a :

$$n = n_0 \frac{T_0}{T} \quad (\text{IV-35})$$

Si on était en régime moléculaire, la correction serait :

$$n = n_0 \sqrt{\frac{T_0}{T}} \quad (\text{IV-36})$$

Pour faire cette correction nous mesurons la température à l'aide d'un thermocouple. La précision est limitée par l'homogénéité de température au niveau de la cellule qui est de l'ordre de 5°C, ce qui donne à nouveau une erreur de 1 %. Au total, la précision de la mesure du nombre d'atome par unité de volume est de l'ordre de 2 à 3 %.

2°/ Le montage expérimental

L'ensemble du montage expérimental est représenté sur la figure (IV-3). Le faisceau laser est divisé en deux parties. Le faisceau 1 est envoyé dans une cellule qui contient du sodium pur, tandis que le faisceau 2 traverse une cellule qui contient à la fois du sodium et du gaz rare. Les signaux des deux photomultiplicateurs sont envoyés sur les voies Y_1 et Y_2 du même enregistreur en fonction du temps. Cela permet de mesurer avec précision les déplacements des raies. Pour calibrer l'enregistrement nous utilisons le Pérot Fabry de 50 cm qui a été décrit précédemment (chapitre II - § I - 3°). Notre enregistreur n'ayant que deux voies Y_1 et Y_2 , un commutateur permet d'envoyer alternativement sur la raie Y_1 le signal du photomultiplicateur 1 ou le signal du Pérot Fabry de 50 cm.

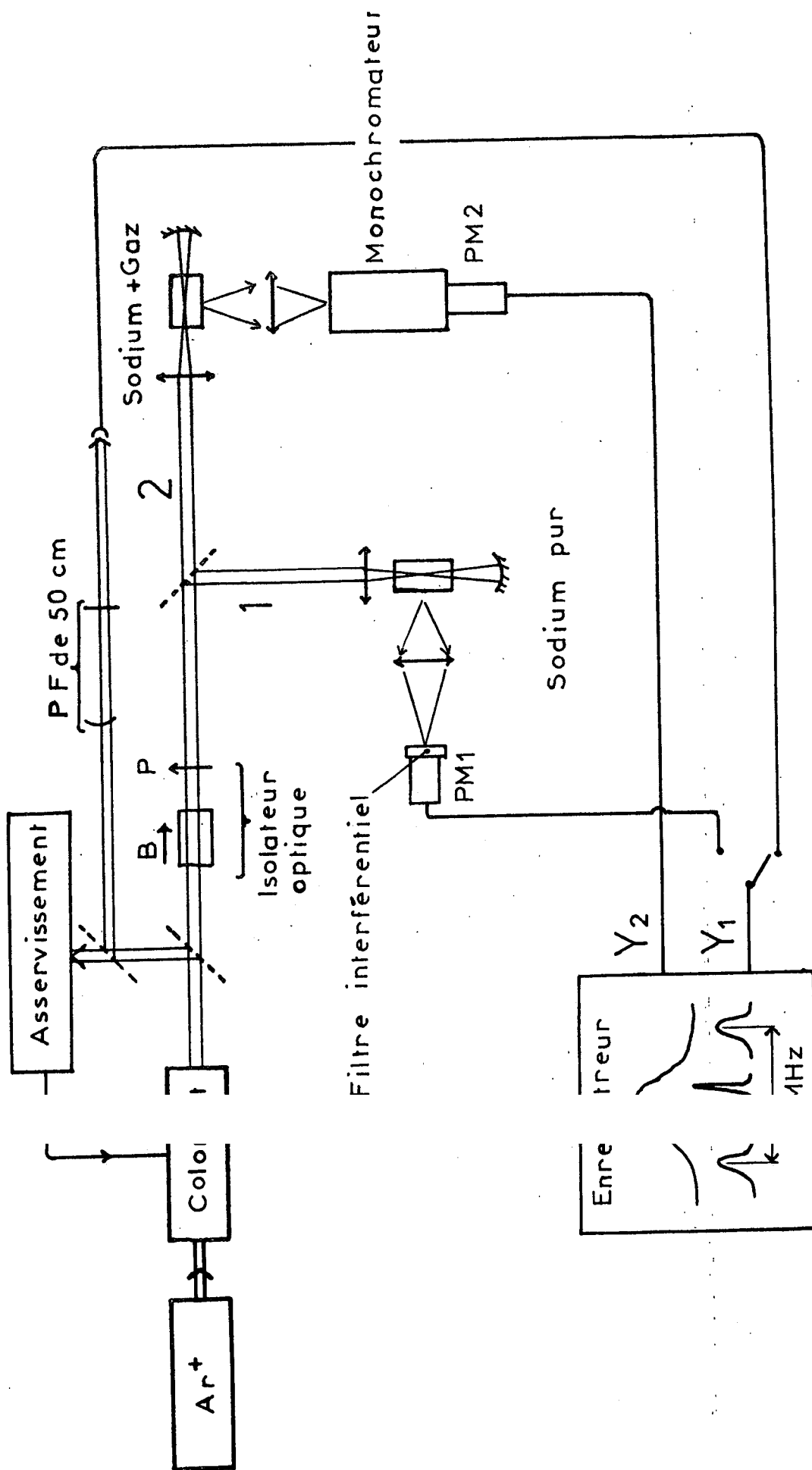


Figure IV - 3

Comme nous l'avons décrit au chapitre II (§ II - 1°) l'expérience proprement dite est isolée optiquement du laser à l'aide d'un verre (flint) placé dans un champ magnétique. A l'aller la polarisation du faisceau laser tourne de 45° par effet Faraday. Au retour la polarisation tourne encore de 45° . Elle est donc perpendiculaire à la polarisation initiale. Dans l'expérience décrite ici la lame séparatrice dépolarise partiellement les faisceaux. Nous avons donc placé un polariseur à 45° de la polarisation initiale de manière à repolariser le faisceau retour avant son passage dans le verre.

3°/ Résultats expérimentaux

Nous avons représenté sur la figure IV-4 une série de courbes obtenues pour la transition $3S$, $F = 2 \rightarrow 4D$, $J = 5/2$ pour plusieurs pressions de Xénon. Ces enregistrements montrent de manière évidente l'élargissement et le déplacement de la raie, ce qui prouve la puissance de la méthode que nous utilisons.

Ce paragraphe est subdivisé en trois parties. Nous étudions d'abord la forme des courbes obtenues de manière à vérifier que l'élargissement est bien lorentzien. Nous décrivons ensuite la technique que nous avons utilisé pour dépouiller les enregistrements. Nous donnons enfin les résultats numériques obtenus.

a) Etude de la forme de raie

L'étude de la forme de raie lorsqu'il n'y a pas de collisions a déjà été faite au chapitre II (§ II - 4°). Nous avons montré qu'en absence de collision la forme de la raie d'absorption à deux photons était dans une bonne approximation un profil de Voigt :

- La partie gaussienne du profil de Voigt correspond essentiellement au "jitter" du laser et au temps de transit. Elle a environ 17 MHz de largeur à mi-hauteur (nous raisonnons sur deux fois la fréquence lumineuse).

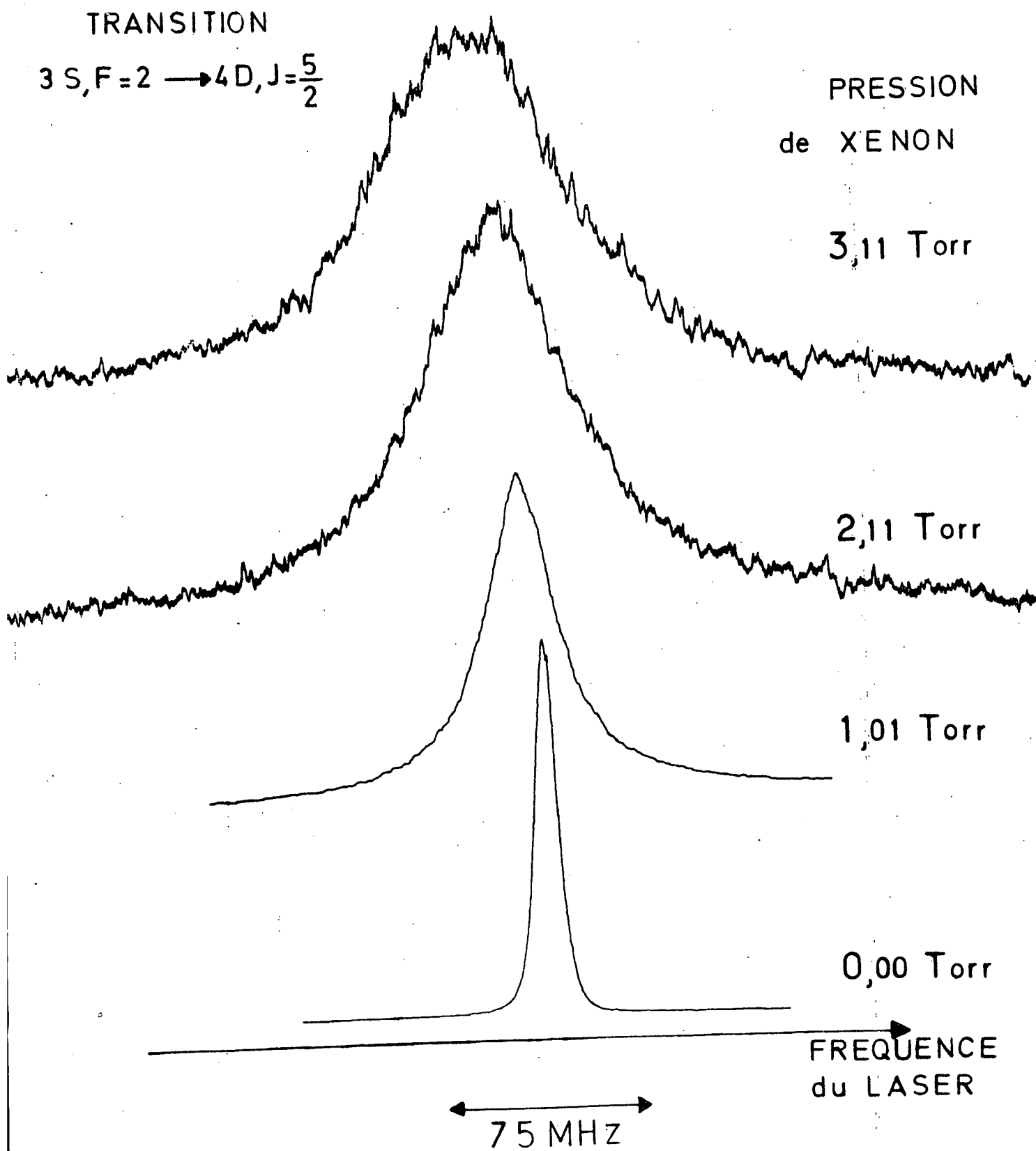


Figure IV_4

- La partie lorentzienne du profil de Voigt correspond à l'émission spontanée et à un élargissement dû à des collisions résiduelles ^{*}. Sa largeur à mi-hauteur est de l'ordre de 6 MHz.

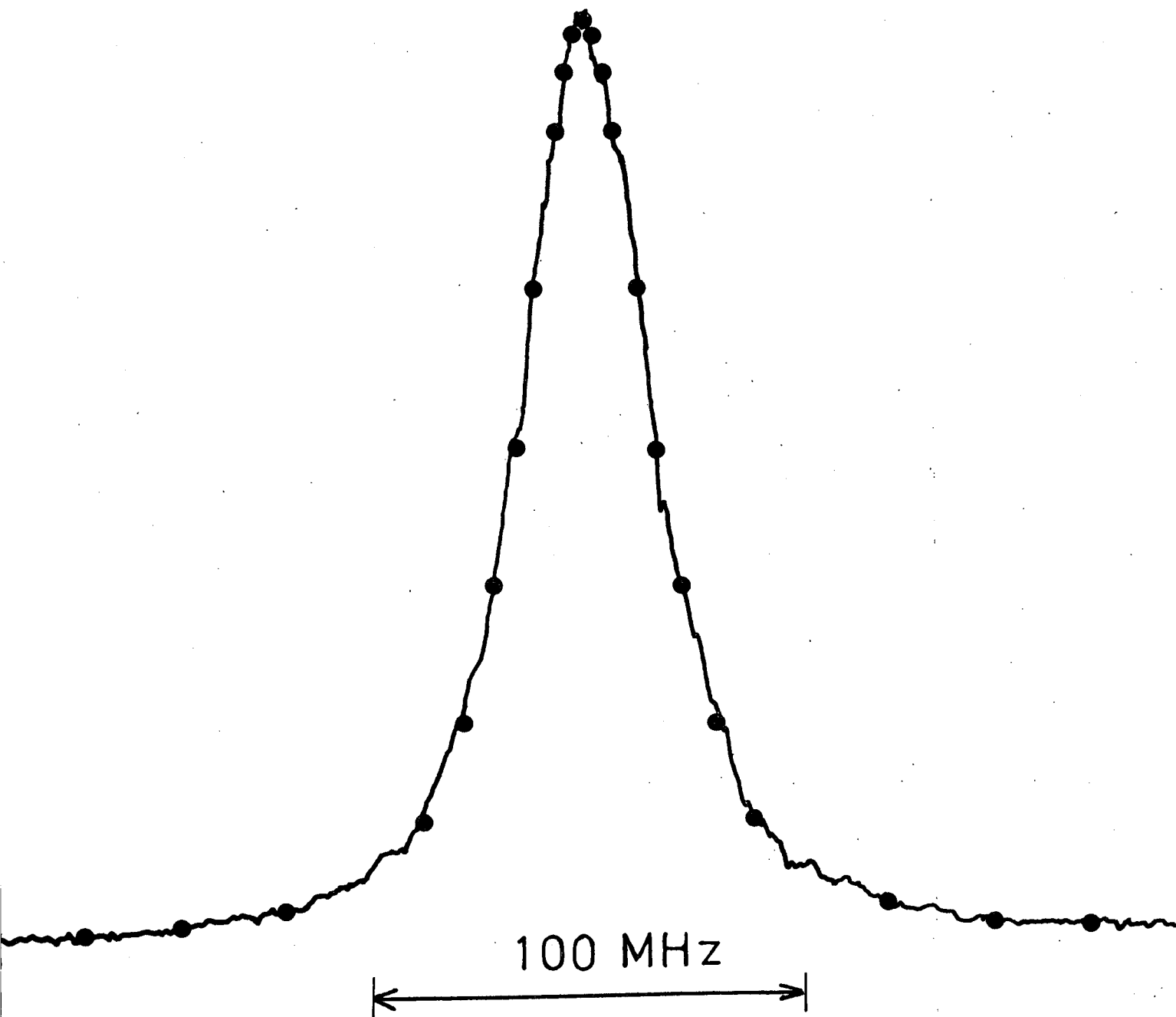
Nous avons vu au début de ce chapitre que l'élargissement des transitions à deux photons 3S-5S et 3S-4D était lorentzien. On en déduit que la forme des raies que nous observons en présence de gaz rare doit rester un profil de Voigt :

- la partie gaussienne de ce profil garde une largeur *constante* de l'ordre de 17 MHz ;
- la partie lorentzienne a une largeur qui croît linéairement avec la pression. C'est ce que nous avons cherché à vérifier expérimentalement. Les figures IV-5 et IV-6 représentent deux enregistrements de la transition 3S-4D en présence de 0,47 Torr et 0,97 Torr d'Hélium. Les points portés sur ces deux figures correspondent au profil de Voigt dont la largeur à mi-hauteur est la même que celle de la courbe expérimentale et dont la partie gaussienne a pour largeur 17 MHz. Nous voyons sur ces deux figures un très bon accord entre ce profil de Voigt et la courbe expérimentale. Nous pouvons donc en déduire que l'élargissement dû aux collisions est effectivement lorentzien.

b) Dépouillement des enregistrements

Les courbes que nous observons étant symétriques, il n'y a aucun problème pour mesurer le déplacement de la raie. Par contre, il n'en va pas de même en ce qui concerne la largeur, car seule la partie lorentzienne du profil de Voigt correspond à l'élargissement par collision. Nous devons donc faire une déconvolution pour obtenir la largeur de cette lorentzienne. Nous utilisons pour cela le graphique de la figure IV-7 : nous considérons un profil de Voigt obtenu par convolution entre une gaussienne de largeur unité et une lorentzienne de largeur variable L . La figure IV-7 représente la largeur à mi-hauteur V de ce profil de Voigt en fonction de L .

* Comme nous le verrons au chapitre V ces collisions peuvent s'observer directement en observant le transfert entre les niveaux de structure fine $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$.

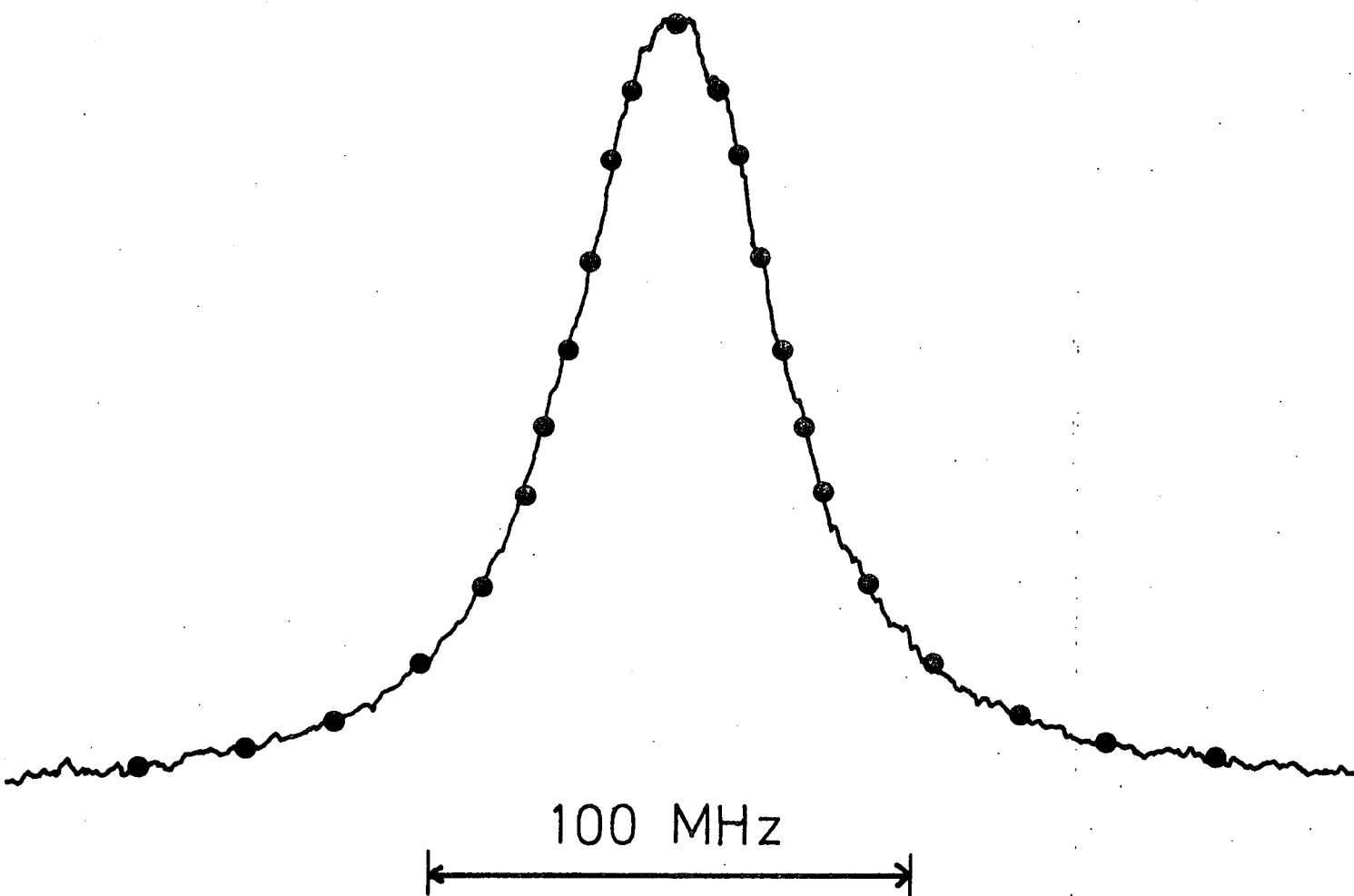


Transition $3S, F=2 \rightarrow 4D, J=\frac{5}{2}$

Pression d'Helium = 0,47 Torr

Les points correspondent au profil de Voigt obtenu par convolution d'une gaussienne de 17 MHz de largeur à mi-hauteur et d'une lorentzienne de 26 MHz de largeur. (La pression indiquée est celle mesurée à 560°K. La fréquence indiquée est deux fois la fréquence du laser).

Figure IV_5

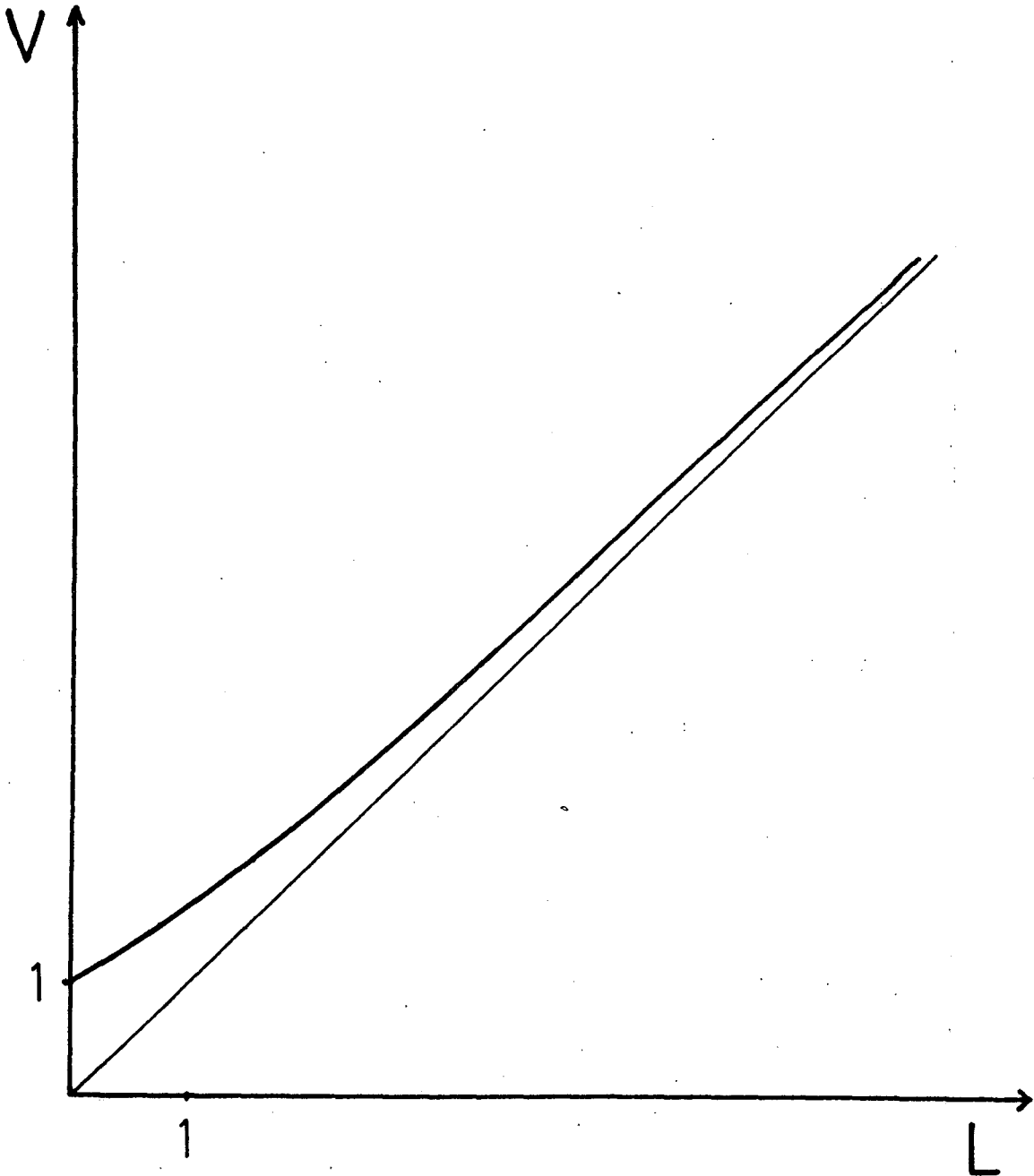


Transition $3S, F=2 \rightarrow 4D, J=\frac{5}{2}$

Pression d'Helium = 0,97 Torr

Les points correspondent au profil de Voigt obtenu par convolution d'une gaussienne de largeur 17 MHz à mi-hauteur et d'une lorentzienne de 46 MHz de largeur à mi-hauteur. (La pression indiquée est mesurée à 560°K. La fréquence indiquée est deux fois la fréquence du laser).

Figure IV_6



Largeur V du profil de Voigt obtenu par produit de convolution entre une gaussienne de largeur unité et une lorentzienne de largeur L .

Figure IV_7

Pour dépouiller les enregistrements nous utilisons la méthode suivante :

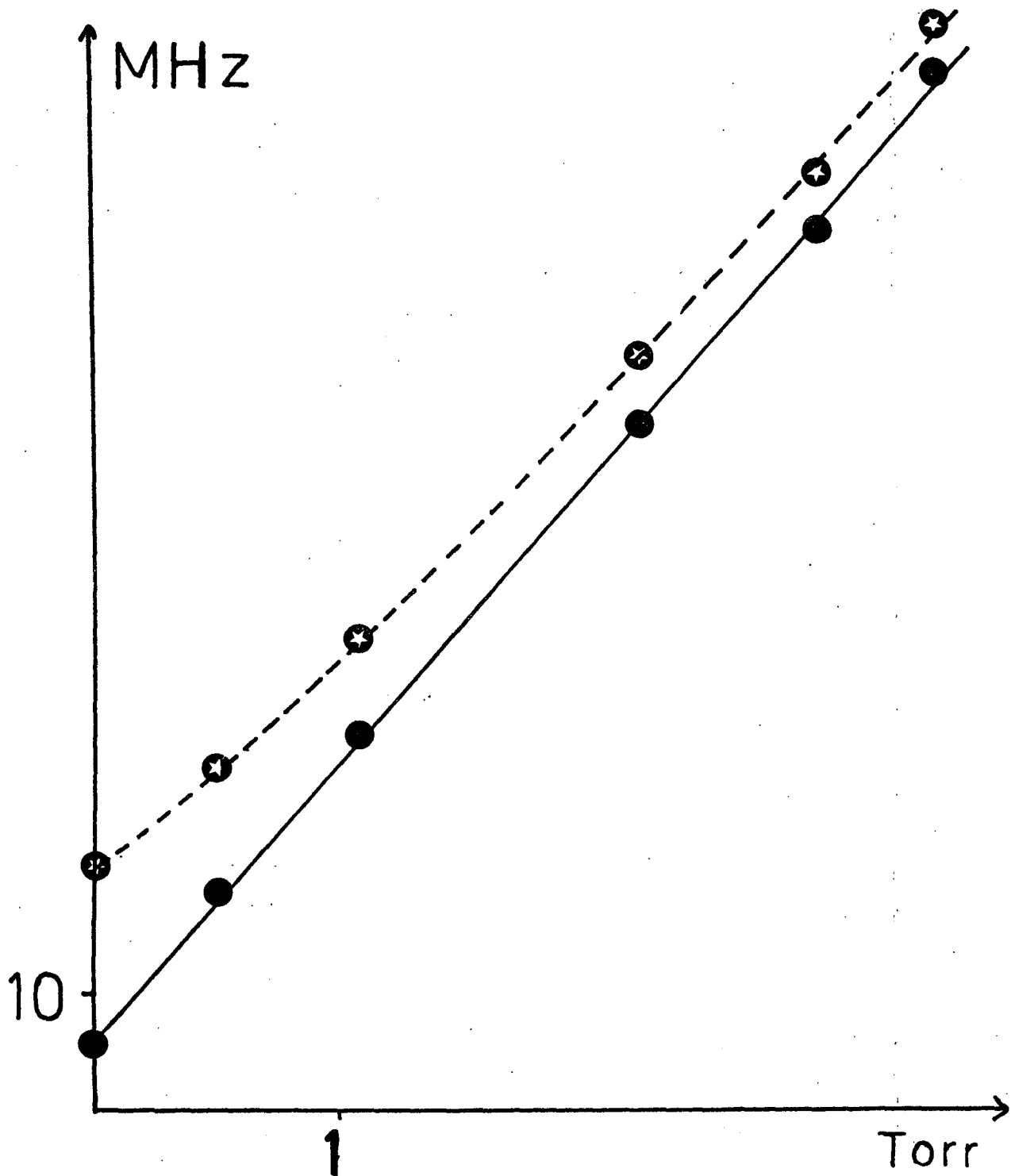
★ Détermination de la largeur à mi-hauteur des courbes expérimentales

Nous mesurons d'abord la largeur à mi-hauteur des courbes enregistrées expérimentalement. Lorsque les raies sont peu élargies (pression inférieure à 2 Torr) il n'y a pas de difficulté car l'asymptote est parfaitement déterminée. Par contre, lorsque les raies sont fortement élargies, nous ne connaissons plus aussi bien l'asymptote pour deux raisons. D'une part les diverses composantes de structure fine et hyperfine commencent à se recouvrir. D'autre part, le fond gaussien dû à l'absorption de deux photons dans le même sens (figure I-2) n'est plus négligeable par rapport à l'absorption sans effet Doppler. Pour déterminer l'asymptote dans ces conditions nous avons supposé qu'à forte pression les courbes expérimentales étaient pratiquement des lorentziennes. Ceci est justifié dans la mesure où la largeur de la gaussienne (17 MHz) devient petite devant celle de la lorentzienne (de l'ordre de 100 MHz et plus). Nous utilisons alors la méthode classique ^{*} pour obtenir l'asymptote de la lorentzienne.

★ Déconvolution du profil de Voigt

Connaissant la largeur de la courbe expérimentale, nous utilisons maintenant le graphique IV-7 pour en déduire la largeur de la lorentzienne. Ceci est possible car l'étude des formes de courbes nous permet d'affirmer que la partie gaussienne du profil de Voigt a une largeur constante de 17 MHz. Le résultat de cette manipulation est illustré par la figure IV-8. Nous avons porté sur cette figure la largeur mesurée expérimentalement (étoiles) et la largeur de la lorentzienne correspondante (points ronds) en fonction de la pression de gaz rare. Nous voyons que la largeur de la lorentzienne varie de manière linéaire avec la pression. La pente de la droite obtenue nous donne le coefficient d'élargissement que nous voulons mesurer. La largeur résiduelle

★ Celle-ci consiste à faire un premier essai en choisissant la position de l'asymptote à priori. On détermine alors la hauteur h_0 et la largeur Γ_0 de la lorentzienne. On corrige alors la position de l'asymptote en vérifiant que les points d'abscisse Γ_0 et $\frac{3}{2}\Gamma_0$ sont à une distance $\frac{h_0}{5}$ et $\frac{h_0}{10}$ de l'asymptote.



Exemple de convolution faite sur la transition 3S-4D en présence de Néon..

- Les étoiles représentent la largeur des courbes expérimentales en fonction de la pression.
- Les ronds représentent la largeur de la lorentzienne extraite du profil de Voigt.

(La pression indiquée est celle mesurée à 560°K. La fréquence indiquée est deux fois la fréquence du laser).

à pression nulle (6 MHz environ) correspond à la largeur naturelle et à un élargissement dû à un résidu de collision. La pente de cette droite dépend en fait de la largeur de la gaussienne (17 MHz) qui nous sert pour déterminer la largeur de la lorentzienne du profil de Voigt. Nous avons vu au chapitre II que la précision sur cette largeur était de l'ordre de 2 MHz. Dans ces conditions on peut montrer que l'erreur qui en résulte pour la pente est de l'ordre de 2 %.

c) Sections efficaces d'élargissement et de déplacement

Nous avons étudié l'élargissement et le déplacement des transitions à deux photons 3S-5S et 3S-4D en présence de gaz rare (He, Ne, Ar, Kr, Xe). Ces expériences ont été faites à 290°C. Nous n'avons pas fait d'étude en fonction de la température car nous ne pouvons pas la faire varier de manière assez importante : au delà de 300°C, la cellule est attaquée par le sodium. Au-dessous de 200°C, le signal devient trop faible. Nous avons cependant vérifié dans le cas de la transition 3S-5S élargie par du néon qu'à 220°C les coefficients d'élargissements étaient, aux incertitudes de mesure près, les mêmes qu'à 290°C. Par ailleurs nous avons dans chaque cas vérifié que les diverses composantes de structure fine et hyperfine ont le même élargissement.

Les figures IV-9, IV-10, IV-11 et IV-12 représentent les largeurs (après déconvolution) et les déplacements des raies pour les transitions 3S-5S et 3S-4D en fonction de la pression de gaz rare ^{*}. Nous voyons que leurs variations sont, aux incertitudes de mesure près, linéaire en fonction de la pression. Les résultats numériques ont été rassemblés dans le tableau suivant. Nous y avons indiqué :

- Le coefficient d'élargissement W . L'unité est le MHz/Torr, la pression de gaz rare étant mesurée à 300°K. Cette largeur est relative à la fréquence atomique, c'est-à-dire à deux fois la fréquence du laser.

* Sur les figures IV-9 et IV-10 nous n'avons pas porté les points correspondant à l'argon car ceux-ci se confondaient pratiquement avec ceux relatifs au xénon.

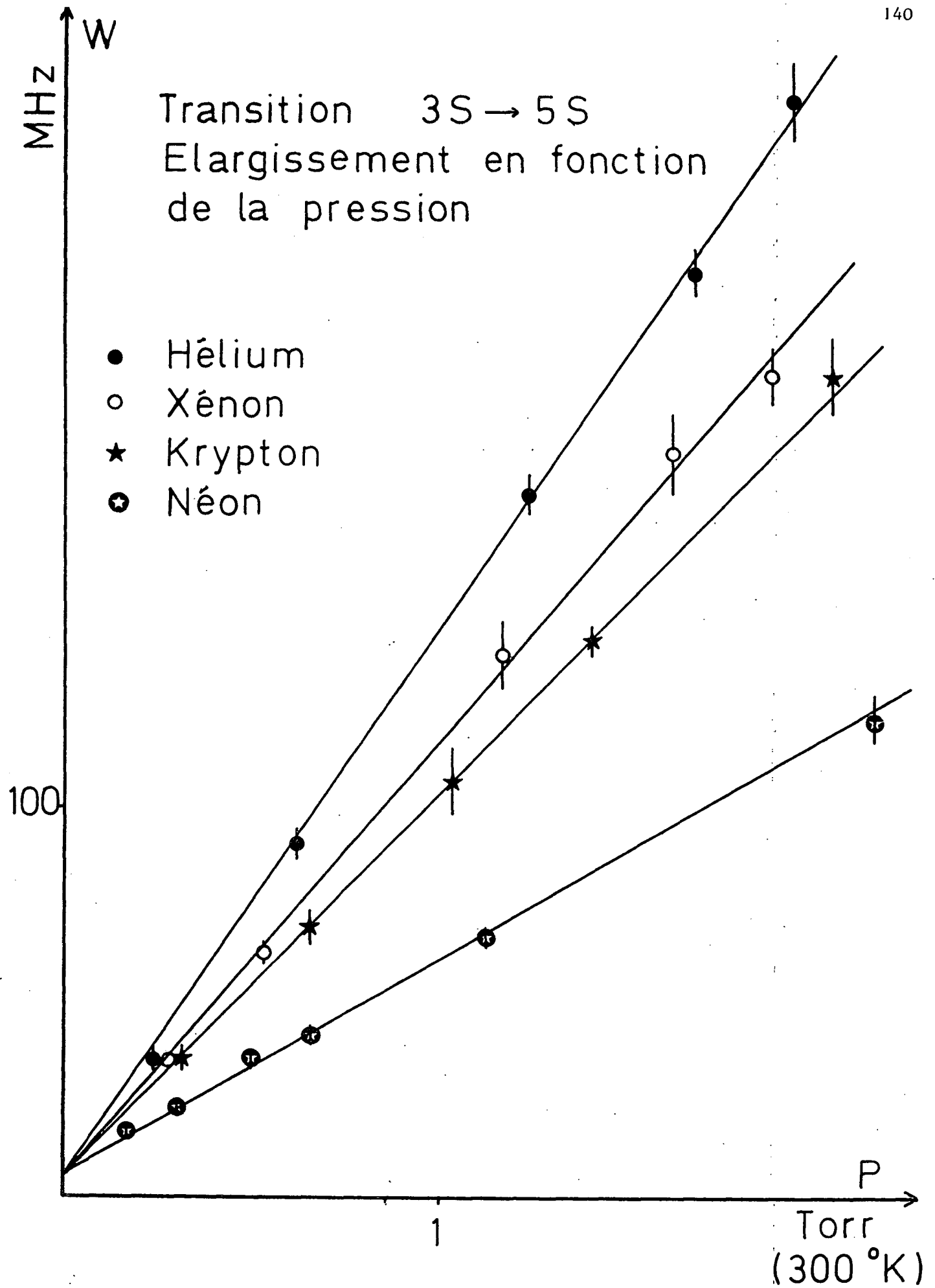
Transition 3S-4D

| | W (MHz/Torr) | σ_b (a_0^2) | S (MHz/Torr) | S/W |
|----|-----------------|---------------------------|------------------|--------|
| He | $78,6 \pm 9,4$ | 1460 | $8,5 \pm 1,9$ | + 0,11 |
| Ne | $43,5 \pm 3,6$ | 1425 | - $6,2 \pm 1,1$ | - 0,14 |
| Ar | $97,6 \pm 10,7$ | 3750 | - $30,0 \pm 3,8$ | - 0,31 |
| Kr | $98,7 \pm 13,9$ | 4190 | - $26,3 \pm 1,5$ | - 0,27 |
| Xe | $99,3 \pm 7,9$ | 4380 | - $30,8 \pm 1,5$ | - 0,31 |

Transition 3S-5S

| | W (MHz/Torr) | σ_b (a_0^2) | S (MHz/Torr) | S/W |
|----|------------------|---------------------------|------------------|--------|
| He | $139,4 \pm 6,2$ | 2590 | $31,7 \pm 4,5$ | + 0,23 |
| Ne | $54,1 \pm 4,7$ | 1770 | $12,8 \pm 1,9$ | + 0,24 |
| Ar | $110,2 \pm 8,3$ | 4240 | - $35,1 \pm 3,2$ | - 0,32 |
| Kr | $98,2 \pm 7,5$ | 4240 | - $24,8 \pm 3,4$ | - 0,25 |
| Xe | $110,5 \pm 10,9$ | 4930 | - $29,5 \pm 1,9$ | - 0,27 |

Tableau 1

Figure IV_9

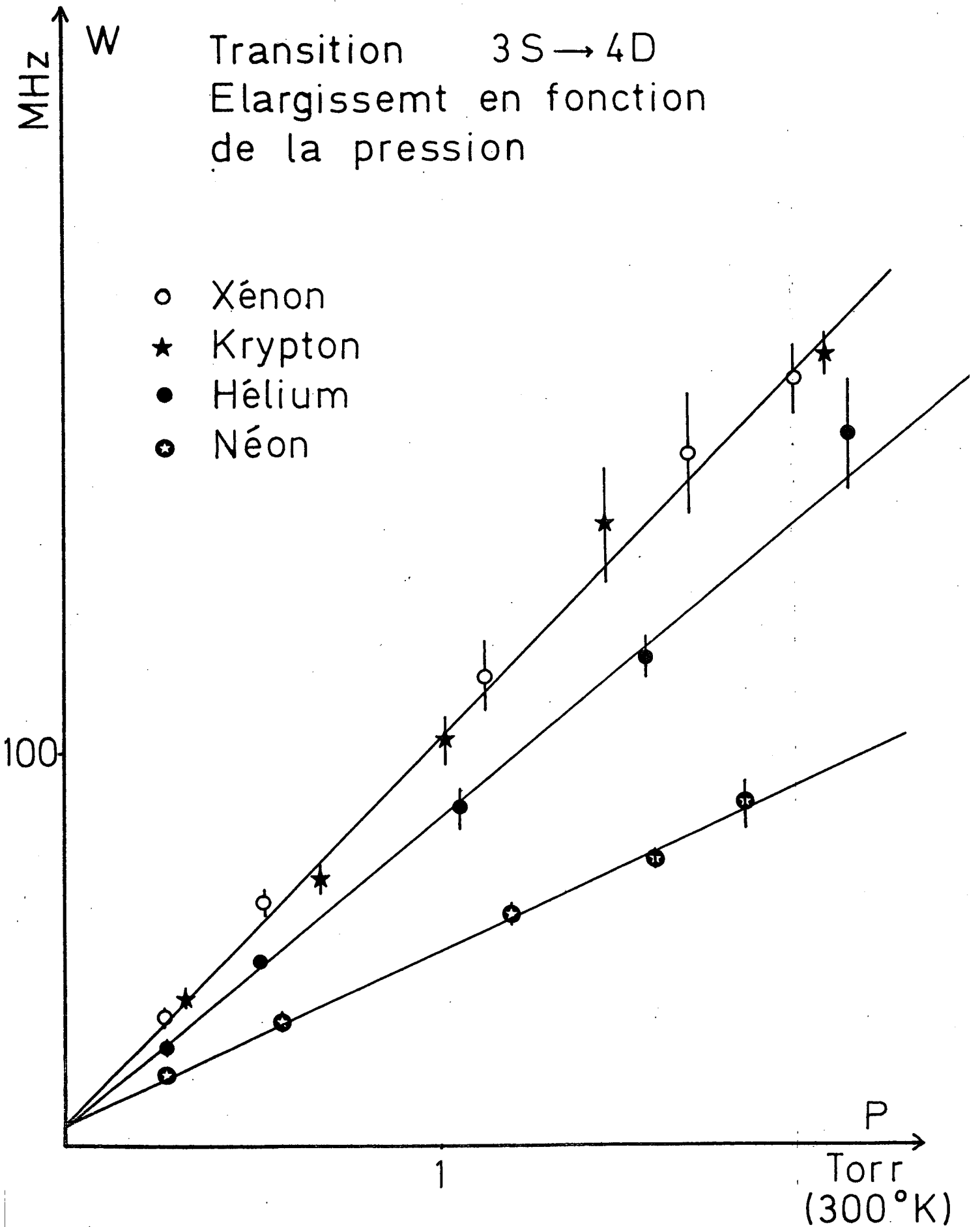
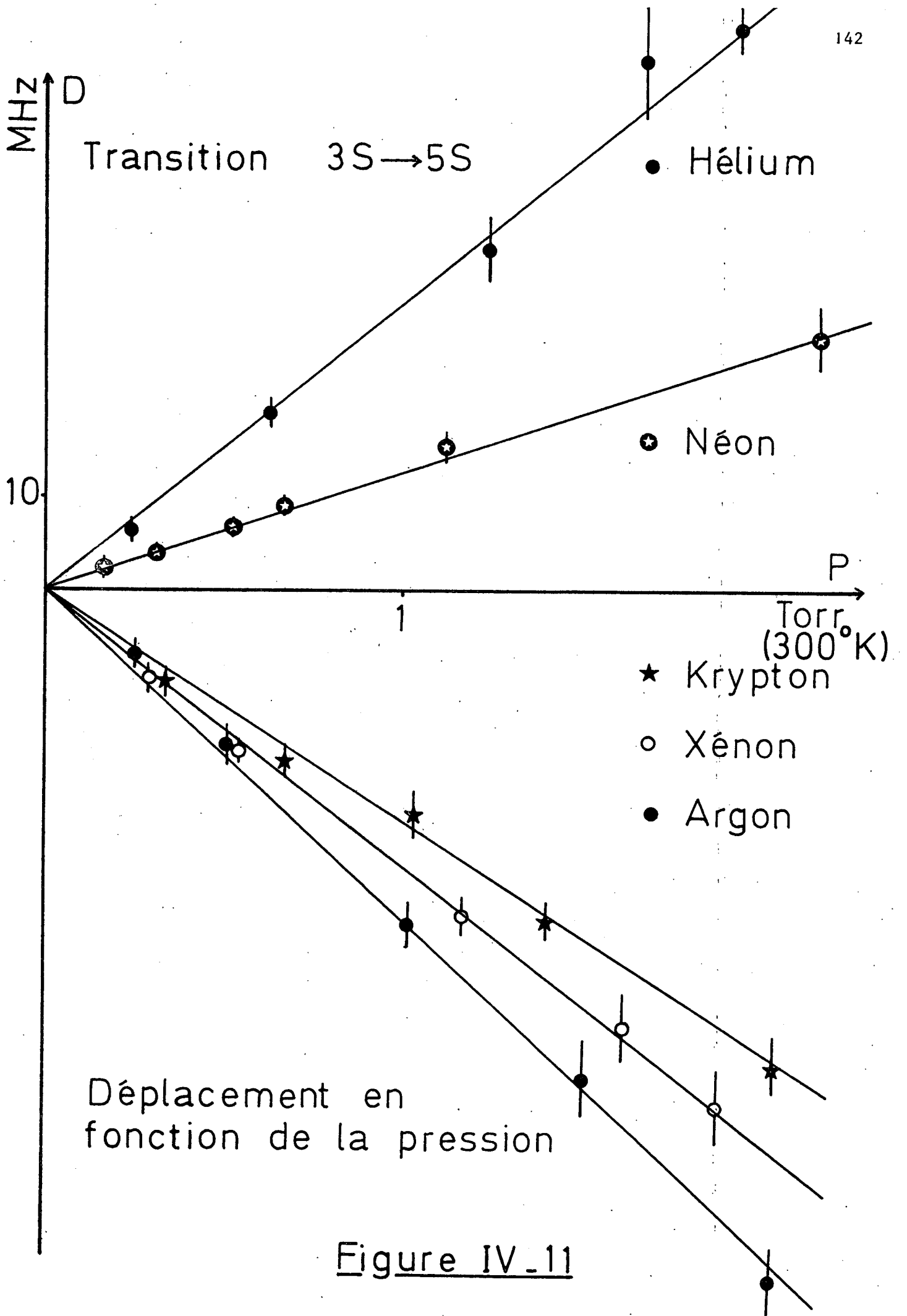


Figure IV_10



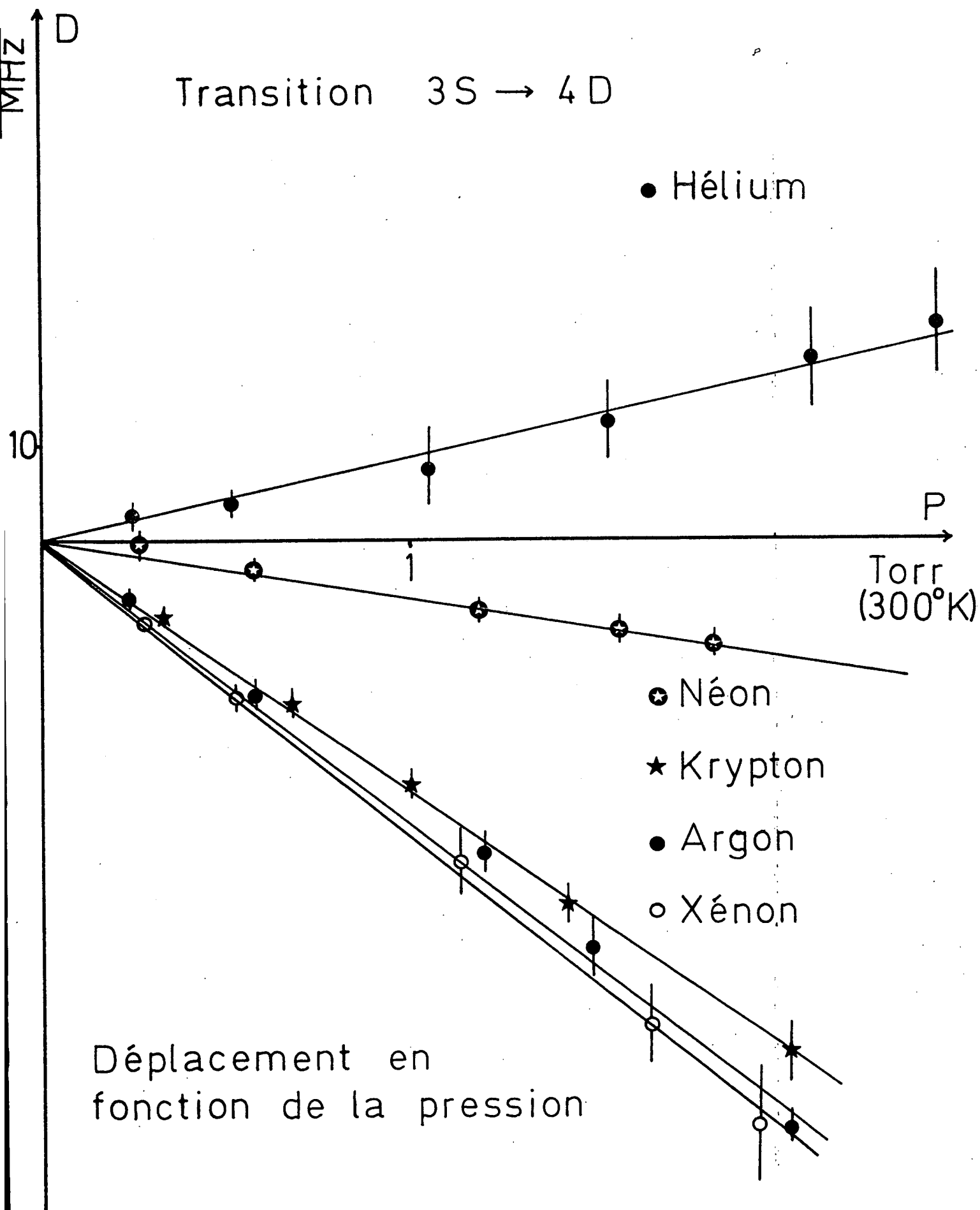


Figure IV.12

- La section efficace d'élargissement σ_b . Celle-ci est définie par :

$$W = 2 n \sigma_b \bar{V} \quad (\text{IV-37})$$

n étant le nombre d'atomes par unité de volume et \bar{V} la vitesse relative moyenne :

$$\bar{V} = \sqrt{\frac{8}{\pi} \frac{kT}{\mu}} \quad \mu \text{ étant la masse réduite.} \quad (\text{IV-38})$$

- Le coefficient de déplacement S , mesuré positivement lorsque le déplacement se fait vers les hautes fréquences.
- Le rapport S/W .

L'erreur que nous indiquons a été déterminée de la manière suivante. Nous calculons d'abord la position de la droite de moindre carré. Soit a_0 la pente de cette droite et Δ_0 l'écart quadratique moyen des points expérimentaux à cette droite. Pour une autre pente $a_0 + \Delta_a$ nous avons un nouvel écart quadratique moyen Δ . Nous choisissons l'erreur Δ_a de manière à tripler l'écart quadratique moyen Δ_0 ($\Delta = 3\Delta_0$). Dans la plupart des cas la précision de nos mesures est de l'ordre de 10 %.

Les points remarquables de ces résultats sont les suivants :

- Les trois gaz rares lourds (Argon, Krypton, Xénon) ont un comportement très voisin, les coefficients d'élargissement et de déplacement étant presque identiques pour ces trois gaz.
- Lorsqu'on passe de ces trois gaz lourds aux gaz rares légers (Néon et Hélium) les coefficients d'élargissement passent par un minimum pour le néon. Ce résultat est analogue à ce que l'on observe pour les raies D_1 et D_2 du sodium ⁽⁹⁾. Par contre les coefficients de déplacement varient de manière monotone : négatifs pour les gaz rares lourds, ils deviennent positifs pour l'hélium. Le néon est un cas intermédiaire, le coefficient

de déplacement S étant encore négatif pour la transition $3S-4D$ et déjà positif pour la transition $3S-5S$.

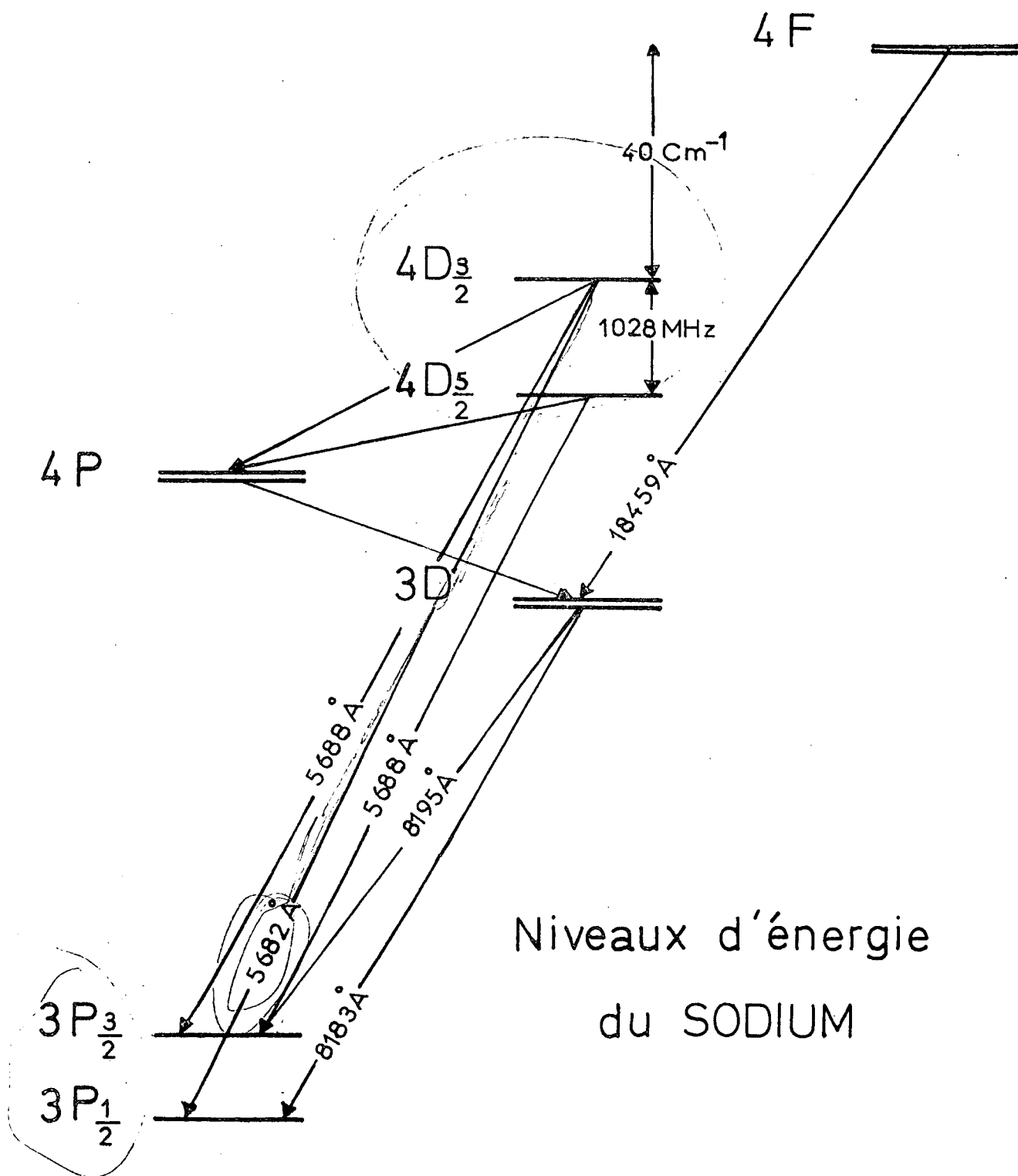
Nous allons nous limiter ici à ces quelques commentaires, la discussion détaillée de ces résultats par comparaison avec leur évaluation théorique étant faite au chapitre VI.

C H A P I T R E V

ETUDE EXPERIMENTALE DE LA RELAXATION A L'INTERIEUR DU NIVEAU 4D

Nous avons prolongé les expériences d'élargissement par collision par l'étude, dans le cas du niveau 4D, de la relaxation des cohérences hertziennes. L'idée de ces expériences est très simple : les collisions contre des atomes de gaz rare peuvent provoquer soit des transferts entre sous-niveaux Zeeman, soit des transferts entre niveaux de structure fine. Ceci se traduit par une dépolarisation de la lumière de fluorescence et par une modification du spectre de fluorescence. Pour faire de telles expériences, la transition à deux photons sans effet Doppler n'est pas essentielle. Elle permet simplement de peupler sélectivement les deux niveaux de structure fine $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$. Cependant il serait possible d'obtenir le même résultat par excitation par échelon en jouant sur les longueurs d'ondes et les polarisations. Avant de présenter en détail ces expériences, nous allons d'abord les décrire grossièrement pour en donner l'idée générale.

Le principe est le suivant. Nous excitons l'un des deux niveaux de structure fine $4D_{3/2}$ (ou $4D_{5/2}$) et nous mesurons les intensités des raies de fluorescence vers les niveaux de résonance $3P_{1/2}$ et $3P_{3/2}$ à 5682 Å et 5688 Å respectivement (figure V-1 : sur cette figure les écarts entre les niveaux



Niveaux d'énergie
du SODIUM

Figure V.1

de structure fine $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$ d'une part et $3P_{1/2}$ et $3P_{3/2}$ d'autre part ne sont pas dessinés à la même échelle). Lorsqu'on fait varier la pression de gaz étranger, les intensités relatives et le taux de polarisation de ces raies varient, ce qui permet d'en déduire les sections efficaces de relaxation. L'exemple le plus simple est de considérer l'excitation du niveau $4D_{5/2}$. A cause des règles de sélection des transitions dipolaires électriques, ce niveau ne peut se désexciter que vers les niveaux $3P_{3/2}$ et $4P_{3/2}$. En absence de collision, au voisinage de 5685 Å, le spectre de fluorescence est composé d'une seule raie à 5688 Å. Par contre, lorsqu'il y a des collisions, celles-ci provoquent un transfert du niveau $4D_{5/2}$ vers le niveau $4D_{3/2}$. Ce dernier pouvant fluorescer vers le niveau $3P_{1/2}$, il apparaît alors une deuxième raie de fluorescence à 5682 Å. Ceci est illustré par les enregistrements de la figure (V-2). Dans cette expérience on excite le niveau $4D_{5/2}$. Pour cela la fréquence du laser reste *fixe* au cours de l'enregistrement et on analyse la lumière de fluorescence en *balayant* le monochromateur placé à la détection. Les trois enregistrements de la figure (V-2) ont été obtenus ainsi (la forme triangulaire des raies de ces enregistrements correspond à la fonction d'appareil du monochromateur). Nous voyons clairement apparaître sur cette figure la raie de fluorescence à 5682 Å lorsqu'on introduit le gaz étranger. Cette expérience permet donc de mesurer simplement les sections efficaces de transfert entre les deux niveaux de structure fine.

Pour interpréter avec précision de telles expériences, il est nécessaire de connaître l'évolution des intensités de fluorescence en fonction de la pression. Pour cela nous allons d'abord préciser les divers coefficients qui caractérisent la relaxation des niveaux $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$ (paragraphe I), puis nous présenterons le calcul des intensités de fluorescence (paragraphe II). Nous verrons alors que notre montage expérimental permet d'observer seulement la population et l'alignement. Nous décrirons ensuite les expériences de transfert de population (paragraphe III), puis les mesures de relaxation de l'alignement (paragraphe IV et V). Les résultats obtenus seront enfin interprétés en fonction de coefficients de relaxation définis en absence de structure fine (paragraphe VI). Nous obtiendrons finalement les sections efficaces de relaxation de la population, de l'orientation, de l'alignement et du multipole d'ordre trois qui caractérisent la relaxation du niveau 4D lorsqu'on ne tient pas compte de la structure fine.

I - COEFFICIENTS DE RELAXATION DU NIVEAU 4D

Le but de ce paragraphe est de préciser les divers coefficients qui caractérisent la relaxation du niveau 4D du sodium. Comme nous l'avons vu précédemment la structure hyperfine du niveau 4D est petite devant la largeur naturelle et, expérimentalement, nous ne pouvons pas distinguer les diverses composantes de structure hyperfine de cet état. Dans la suite nous allons donc négliger cette structure hyperfine et nous considérerons que le niveau 4D se décompose simplement en deux niveaux de structure fine $J = 3/2$ et $J = 5/2$. Cependant nous reviendrons sur les problèmes posés par cette structure hyperfine au sujet de la mesure des taux de polarisation des raies de fluorescence en absence de collisions (paragraphe IV-2°).

Avant d'étudier en détail les divers coefficients qui caractérisent la relaxation des deux niveaux de structure fine, nous allons d'abord examiner le cas d'un niveau de moment cinétique $L = 2$ sans spin électronique.

1° / Relaxation d'un moment cinétique $L = 2$

A l'intérieur d'un niveau de moment cinétique L la matrice de relaxation a une forme très simple. Dans ce cas il y a seulement $2L + 1$ opérateurs tensoriels d'ordre k ($0 \leq k \leq 2L$). En reprenant les notations du chapitre IV (formule IV-8), l'action de la matrice de relaxation sur la matrice densité peut s'écrire sous la forme :

$$\Phi \left| \begin{matrix} L & L \\ & T \end{matrix} \right. \begin{matrix} k \\ q \end{matrix} \gg \gg = \begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Phi \left| \begin{matrix} k \\ LL \\ & T \end{matrix} \right. \begin{matrix} k \\ q \end{matrix} \gg \gg \quad (V-1)$$

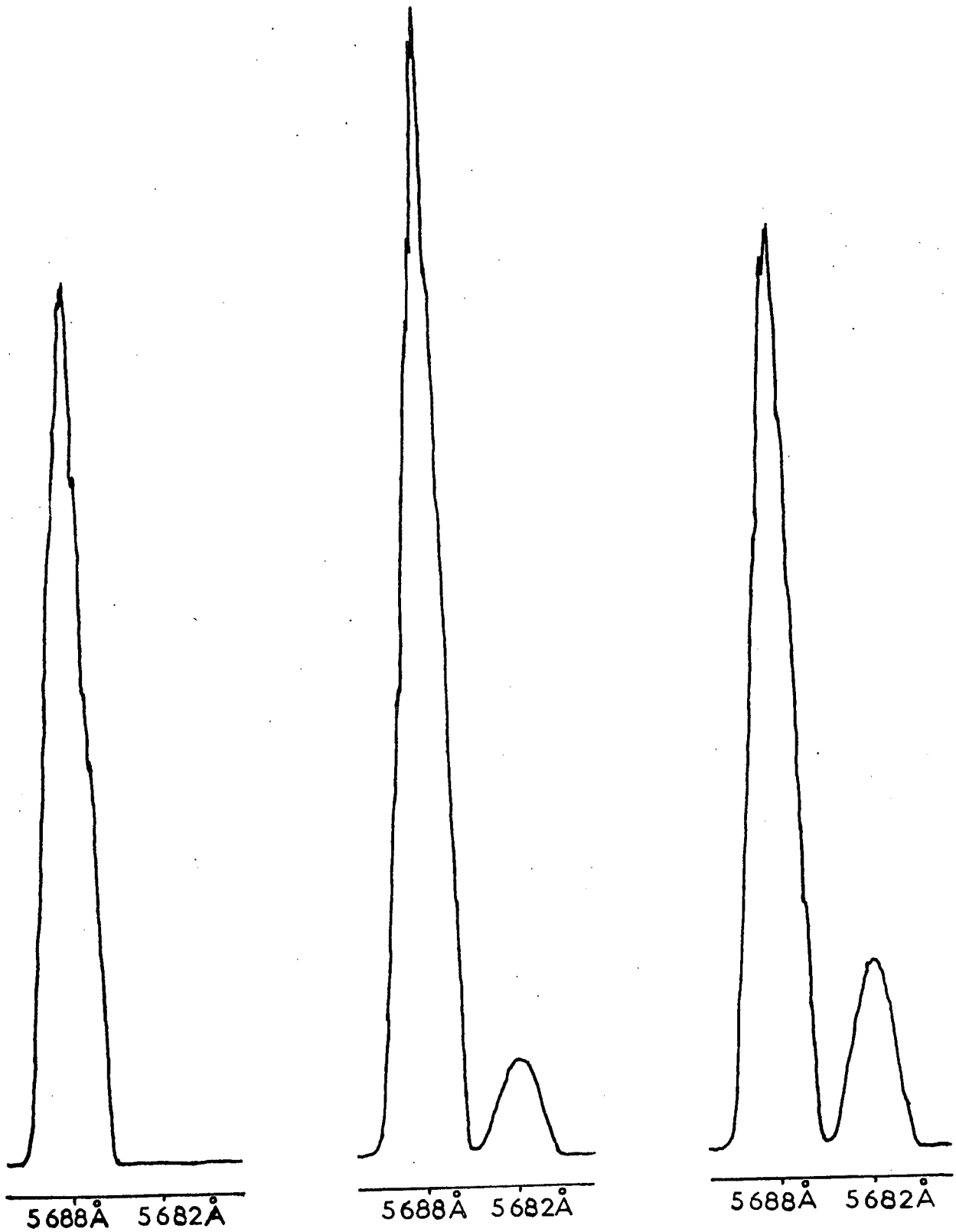
La relaxation à l'intérieur du niveau considéré est donc caractérisée par $2L + 1$ constantes $\begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Phi^k$ qui correspondent à la relaxation des $2L + 1$ multipoles.

Dans le cas du niveau 4D nous avons cinq constantes de relaxation que nous noterons pour simplifier G^k ($0 \leq k \leq 4$). La constante G^0 représente la relaxation de la population. Si les collisions ne provoquent pas de trans-

P=0,00 Torr

P=0,07 Torr

P=0,30 Torr



EXCITATION $3S, F=2 \rightarrow 4D, J=\frac{5}{2}$

Fluorescence vers les niveaux $3P_{\frac{1}{2}}$ et $3P_{\frac{3}{2}}$

Figure V_2

fert vers des niveaux de nombres quantiques n et L différents nous avons $G^0 = 0$. Dans notre cas le niveau $4D$ est très proche du niveau $4F$ ($\Delta E = 40 \text{ cm}^{-1}$, Figure V-1) et il y a des transferts entre ces deux niveaux : G^0 n'est donc pas nul. Les quatre autres constantes G^1 , G^2 , G^3 et G^4 correspondent respectivement à la relaxation de l'orientation, de l'alignement et des moments multipolaires d'ordre 3 et 4.

2°/ Coefficients de relaxation en présence de structure fine

Nous allons maintenant préciser les coefficients de relaxation en présence de structure fine. Nous considérons pour cela l'évolution de la matrice densité ρ sous l'influence des collisions. Nous développons d'abord ρ sur la base des opérateurs tensoriels irréductibles. Dans ce développement nous nous limitons aux seuls opérateurs qui agissent à l'intérieur du niveau $4D$ que nous notons $\begin{matrix} J & J' & T & K \\ & & & Q \end{matrix}$:

$$\rho = \sum_{\substack{K, Q \\ J, J'}} \begin{matrix} J & J' & T & K \\ & & & Q \end{matrix} \rho \begin{matrix} J & J' & T & K \\ & & & Q \end{matrix} \quad (\text{V-2})$$

Nous écrivons l'équation d'évolution de ρ en faisant deux approximations:

- Dans un premier temps nous allons négliger l'influence du niveau $4F$, c'est-à-dire que nous restreignons l'évolution de ρ à l'intérieur du niveau $4D$.
- Nous faisons de plus l'*approximation séculaire*. Les coefficients $\begin{matrix} J & J' & T & K \\ & & & Q \end{matrix} \rho$ définis ci-dessus évoluent à la fréquence $\omega_J - \omega_{J'}$, ($\hbar(\omega_J - \omega_{J'})$ étant l'écart d'énergie entre les deux niveaux J et J'). L'approximation séculaire consiste à supposer que le coefficient $\begin{matrix} J & J' & T & K \\ & & & Q \end{matrix} \rho$ n'est couplé qu'aux éléments de la matrice densité évoluant à une fréquence voisine de $\omega_J - \omega_{J'}$. Dans notre cas, l'excitation à deux photons étant sélective, nous excitons soit le niveau $4D_{3/2}$, soit le niveau $4D_{5/2}$: nous ne créons donc pas de cohérence de structure fine entre ces deux niveaux. Compte tenu de l'approximation séculaire nous n'avons à considérer dans ces conditions que les éléments de la matrice densité qui évoluent à fréquence nulle. Cela revient à ne considérer dans le développement (V-2) que les termes pour lesquels $J = J'$.

Pour simplifier nous noterons désormais ces coefficients $\rho_{J'Q}^{JK}$. De même l'évolution de la matrice densité ρ ne fera intervenir que les coefficients $\rho_{J'Q}^{JK}$ que nous appellerons pour simplifier $\phi_{J'Q}^K$.

Avec ces notations, l'équation d'évolution de ρ (équation IV-7) s'écrit maintenant :

$$\frac{d}{dt} (\rho_{J'Q}^{JK})_{\text{coll}} = - \sum_{J'} \phi_{J'Q}^K \times \rho_{J'Q}^{JK} \quad (\text{V-3})$$

Ceci nous permet de préciser la signification physique des coefficients $\phi_{J'Q}^K$:

- Chacun des $(2J + 1)$ coefficients ϕ_{JQ}^K représente la relaxation du multipole d'ordre K du niveau J ($J = 3/2$ ou $J = 5/2$).
- Chacun des coefficients $\phi_{J'Q}^K$ correspond au transfert du multipole d'ordre K entre les niveaux J et J' .

Dans l'hypothèse d'une petite structure fine, ces divers coefficients ne sont pas indépendants et on peut les calculer en fonction des coefficients G^k définis au paragraphe précédent.

3°/ Calcul des coefficients $\phi_{J'Q}^K$

Nous reprenons ici le raisonnement fait au chapitre IV à propos des coefficients d'élargissements : si la structure fine ΔE est suffisamment petite, le hamiltonien de structure fine n'a pas le temps de faire évoluer l'atome pendant le temps τ_c que dure la collision. Le calcul se ramène donc à découpler \vec{L} et \vec{S} avant la collision, étudier l'effet de la collision sur \vec{L} et enfin recoupler \vec{L} et \vec{S} après la collision. Il s'agit donc d'un simple problème d'algèbre tensorielle que nous avons déjà traité au chapitre IV. Nous appliquons la formule (IV-30) au cas du niveau 4D ($L = 2$; $S = 1/2$). On a alors :

$$\phi_{J'Q}^K = \sum_{k, k'} (2k+1)(2k'+1)(2J+1)(2J'+1) \begin{Bmatrix} 2 & 1/2 & J \\ 2 & 1/2 & J \\ k & k' & K \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 2 & 1/2 & J' \\ 2 & 1/2 & J' \\ k & k' & K \end{Bmatrix} G^k$$

(V-4)

Expression que nous pouvons écrire de manière condensée :

$$\frac{J}{J'} \phi^K = \sum_k \frac{J}{J'} \alpha_k^K G^k \quad (V-5)$$

Le coefficient $\frac{J}{J'} \alpha_k^K$ étant le coefficient de G^k dans l'équation (V-4).

Nous remarquons par ailleurs que l'expression de $\frac{J}{J'} \phi^K$ est symétrique par échange de J et J' :

$$\frac{J}{J'} \phi^K = \frac{J'}{J} \phi^K \quad (V-6)$$

L'expression (V-4) est difficilement utilisable directement car les coefficients 9-j ne sont pas tabulés. Le calcul numérique des coefficients de l'équation (V-4) a déjà été fait par G. Meunier ⁽¹⁾ dans le cas du niveau 4D du sodium. Nous avons rassemblé dans le tableau I suivant les résultats qu'il a obtenus

Tableau I

| | K | $\frac{J}{J'} \phi^K$ |
|---|-------|---|
| Relaxation $J = \frac{3}{2}$ $J = J' = \frac{3}{2}$ | 0 | $\frac{1}{5} (2G^0 + 3G^1) = G^0 + \frac{3}{5} (G^1 - G^0)$ |
| | 1 | $\frac{1}{25} (2G^0 + 9G^1 + 14G^2)$ |
| | 2 | $\frac{1}{125} (6G^1 + 35G^2 + 84G^3)$ |
| | 3 | $\frac{1}{175} (3G^2 + 28G^3 + 144G^4)$ |
| Relaxation $J = \frac{5}{2}$ $J = J' = \frac{5}{2}$ | 0 | $\frac{1}{5} (3G^0 + 2G^1) = G^0 + \frac{2}{5} (G^1 - G^0)$ |
| | 1 | $\frac{1}{25} (7G^0 + 14G^1 + 4G^2)$ |
| | 2 | $\frac{1}{125} (56G^1 + 60G^2 + 9G^3)$ |
| | 3 | $\frac{1}{175} (108G^2 + 63G^3 + 4G^4)$ |
| | 4 | $\frac{1}{5} (4G^3 + G^4)$ |
| 5 | G^4 | |
| Transfert $J = \frac{3}{2} \rightarrow J' = \frac{5}{2}$ | 0 | $\frac{\sqrt{6}}{5} (G^0 - G^1)$ |
| | 1 | $\frac{\sqrt{14}}{25} (-G^0 + 3G^1 - 2G^2)$ |
| | 2 | $\frac{\sqrt{21}}{125} (-4G^1 + 10G^2 - 6G^3)$ |
| | 3 | $\frac{1}{175} (-18G^2 + 42G^3 - 24G^4)$ |

Les coefficients $\alpha_{J', k}^J$ qui apparaissent dans ce tableau ne sont pas indépendants et ils vérifient entre eux des relations simples. D'une part, la règle d'orthogonalité des coefficients 9-j (Messiah ⁽²⁾) permet d'obtenir les deux relations suivantes :

$$\ast \text{ Quelques soient } J \text{ et } J' : \quad \sum_k \alpha_{J', k}^J = \delta_{JJ'} \quad (\text{V-7})$$

$$\ast \text{ Dans le cas où } J = J' : \quad \sum_K (2K+1) \alpha_K^J = \frac{1}{25} (2k+1)(2J+1)^2 \quad (\text{V-8})$$

La première de ces relations nous montre en particulier que les coefficients $\alpha_{J', k}^J$ relatifs au transfert entre les niveaux J et J' ne dépendent que des différences entre les coefficients G^k . Par exemple on peut réécrire le coefficient de transfert d'alignement sous la forme :

$$\alpha_{5/2}^{3/2} = \frac{\sqrt{21}}{125} [4(G^2 - G^1) + 6(G^2 - G^3)]$$

Par ailleurs les coefficients $\alpha_{J', k}^J$ ($K = k$) se ramènent à des coefficients 6-j. En effet la somme sur k' de l'équation V-4 ne comporte qu'un terme. D'une part k' vaut 0 ou 1. D'autre part les coefficients 9-j de l'équation V-4 ont deux lignes identiques, c'est-à-dire qu'ils sont nuls si la somme des j est impaire. Dans ces conditions, si $K = k$, on voit facilement que k' doit être pair, c'est-à-dire nul. Les coefficients 9-j se ramènent donc à des coefficients 6-j et l'on a :

$$\alpha_{J', k}^J = \frac{1}{2} (-1)^{1+J+J'} (2J+1)(2J'+1) \begin{Bmatrix} J & J & k \\ 2 & 2 & \frac{1}{2} \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J' & J' & k \\ 2 & 2 & \frac{1}{2} \end{Bmatrix} \quad (\text{V-9})$$

Enfin le fait que la somme sur k' se réduise à un seul terme (équation V-4) entraîne que les coefficients $\alpha_{5/2}^{3/2}$ relatifs au transfert entre les niveaux $J = 3/2$ et $J = 5/2$ sont directement reliés aux coefficients $\alpha_{3/2}^{3/2}$ et $\alpha_{5/2}^{5/2}$ relatifs à la relaxation à l'intérieur des niveaux $J = 3/2$ et $J = 5/2$. On a en effet :

$$\left(\alpha_{5/2}^{3/2} \right)^2 = \alpha_{3/2}^{3/2} \times \alpha_{5/2}^{5/2} \quad (\text{V-10})$$

Finalement, les diverses relations que nous venons d'établir (V-7, V-8, V-9 et V-10) permettent de retrouver rapidement tous les coefficients du tableau I.

En définitive les divers coefficients $J_{J'}^K$ se ramènent simplement aux coefficients G^k . Nous allons donc suivre la démarche suivante :

- Nous mesurons d'abord les coefficients $J_{J'}^K$ qui représentent la relaxation en présence de structure fine.
- Nous en déduisons les coefficients G^k indépendants de la structure fine.
- Enfin nous comparerons les valeurs expérimentales des coefficients G^k à des calculs théoriques que nous présenterons au chapitre suivant.

Nous sommes maintenant en mesure de décrire les expériences proprement dites. Nous commençons par calculer les divers signaux que nous avons détectés.

II - CALCUL DES INTENSITES ET DES POLARISATIONS DES RAIES DE FLUORESCENCE

Comme nous l'avons expliqué dans l'introduction de ce chapitre, les expériences que nous avons faites reposent sur la mesure des intensités et des taux de polarisation des deux raies de fluorescence à 5682 Å et 5688 Å. Dans cette partie nous présentons d'abord le calcul de ces intensités. Ce calcul est assez pénible et nous en avons reporté une partie dans l'appendice C. A la lumière de ces résultats nous pourrions préciser ensuite les expériences qui nous permettent de mesurer les divers coefficients de relaxation : mesure du transfert de population, mesure de la variation des taux de polarisation en fonction de la pression et mesure du transfert d'alignement. Ces expériences sont imbriquées les unes dans les autres et elles forment un enchaînement logique que nous présentons en conclusion de cette partie.

1°/ Calcul de la matrice densité stationnaire en négligeant le niveau 4F

Nous devons d'abord calculer la matrice densité ρ_e dans l'état excité. Nous écrivons pour cela l'équation d'évolution de ρ_e :

$$\frac{d}{dt} \rho_e = \left(\frac{d}{dt} \rho_e \right)_p - \Gamma_e \rho_e - \Phi \rho_e \quad (V-11)$$

Les deux derniers termes représentent l'émission spontanée et la relaxation. Le terme $\left(\frac{d}{dt} \rho_e \right)_p$ représente l'excitation à deux photons qui sert à peupler l'état excité e. On peut l'écrire en fonction de l'opérateur transition à deux photons $eg_{\epsilon\epsilon}^S$:

$$\left(\frac{d}{dt} \rho_e \right)_p = \frac{4 n_1 n_2 \omega^2}{\epsilon_0^2 \Gamma_e} eg_{\epsilon\epsilon}^S \rho_g (eg_{\epsilon\epsilon}^S)^+ \quad (V-12)$$

Dans cette expression n_1 et n_2 sont le nombre de photons par unité de volume de chacune des ondes progressives et ρ_g la matrice densité dans l'état fondamental. Dans le cas particulier de la géométrie expérimentale que nous avons utilisée, cet opérateur d'excitation possède des propriétés simples. Cette géométrie est représentée sur la figure (V-3) : le faisceau laser est polarisé circulairement et la détection se fait perpendiculairement au faisceau. Si nous choisissons comme axe de quantification la direction du faisceau laser, l'opérateur transition à deux photons se réduit alors à un opérateur T_2^2 (cf chapitre I - § I - 3°). Dans ces conditions, si l'on suppose que la matrice densité dans l'état fondamental ρ_g est isotrope, nous montrons dans

Détection

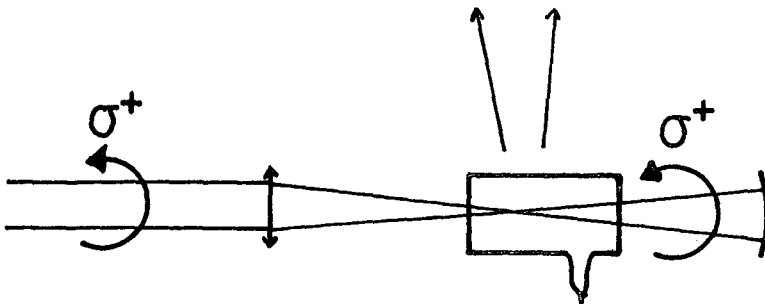


Figure V.3

l'appendice C que nous n'excitons que des grandeurs longitudinales, c'est-à-dire des coefficients $\rho_{Q}^{J K}$ de la matrice densité correspondant à $Q = 0$. Le développement de l'opérateur d'excitation $(\frac{d}{dt} \rho_e)_p$ sur la base des opérateurs tensoriels irréductibles va donc s'écrire :

$$\left(\frac{d}{dt} \rho_e\right)_p = \sum_{K, J} J_P^K \times J^J_T^K \quad (V-13)$$

Les opérateurs $J^{J'}_T^K$ ($J \neq J'$) n'apparaissent pas dans ce développement car, l'excitation étant sélective en fréquence, nous ne créons pas de cohérence entre les deux niveaux de structure fine. Les coefficients d'excitation J_P^K ont été calculés dans l'appendice C (Tableau III).

Nous allons d'abord nous limiter au cas où l'on suppose que seuls les deux niveaux de structure fine $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$ interviennent. Cela revient en fait à négliger le transfert vers le niveau $4F$. Nous pouvons alors appliquer le développement (V-3) qui représente l'action de la matrice de relaxation sur la matrice densité ρ_e . Nous avons :

$$\frac{d}{dt} J_P^K = J_P^K - \Gamma_e \times J_P^K - \sum_{J'} J_{J'}^J \Phi^K \times J'^P^K \quad (V-14)$$

En régime stationnaire ($\frac{d\rho_e}{dt} = 0$) nous obtenons finalement pour chaque ordre tensoriel K séparément un système de deux équations à deux inconnues $^{3/2} \rho_o^K$ et $^{5/2} \rho_o^K$. La résolution étant immédiate, on obtient :

$$^{3/2} \rho_o^K = \frac{(\Gamma_e + \frac{5}{2} \Phi^K) ^{3/2} P_o^K - \frac{3}{2} \Phi^K ^{5/2} P_o^K}{(\Gamma_e + \frac{5}{2} \Phi^K)(\Gamma_e + \frac{3}{2} \Phi^K) - (\frac{3}{2} \Phi^K)^2} \quad (V-15)$$

$$^{5/2} \rho_o^K = \frac{(\Gamma_e + \frac{3}{2} \Phi^K) ^{5/2} P_o^K - \frac{3}{2} \Phi^K ^{3/2} P_o^K}{(\Gamma_e + \frac{5}{2} \Phi^K)(\Gamma_e + \frac{3}{2} \Phi^K) - (\frac{3}{2} \Phi^K)^2}$$

Remarquons d'abord que ces deux relations sont symétriques par échange de J et J' . Par ailleurs dans nos expériences ces expressions se simplifient notablement dans la mesure où un seul des coefficients d'excitation J_P^K est non nul (On excite soit le niveau $J = 3/2$, soit le niveau $J = 5/2$, mais pas les deux à la fois). Nous allons maintenant tenir compte du transfert vers le niveau $4F$.

2°/ Influence du niveau 4F

Le niveau 4F étant distant de $\Delta E = 40 \text{ cm}^{-1}$ du niveau 4D, les transferts vers ce niveau ne sont pas totalement négligeables et nous devons en tenir compte. Cependant nous allons supposer qu'il n'y a que du transfert de population et qu'il n'y a pas de transfert d'alignement. Ceci est légitime pour deux raisons. D'une part le transfert d'alignement est généralement beaucoup plus petit que le transfert de population. D'autre part, le transfert vers le niveau 4F est petit par rapport à la relaxation à l'intérieur du niveau 4D : dans ces conditions l'alignement créé à l'intérieur du niveau 4D est déjà pratiquement détruit lorsque le transfert vers le niveau 4F devient important.

Lorsqu'on étudie les populations, il est plus agréable de raisonner directement sur le nombre d'atomes et non sur les coefficients de la matrice densité. Pour simplifier nous supposons que le niveau 4F n'a pas de structure. Dans ces conditions nous avons seulement à considérer les populations $n(3/2)$, $n(5/2)$ et $n(4F)$ des niveaux $4D_{3/2}$, $4D_{5/2}$ et 4F. La population du niveau $4D_J$ est reliée de manière simple au coefficient ${}^J \rho_o^o$:

$$n(J) = N \text{tr} \quad {}^J \rho_o^o \times \quad {}^J J T_o^o = N \sqrt{2J+1} \quad {}^J \rho_o^o \quad (V-16)$$

(N étant le nombre d'atomes soumis à l'excitation).

Nous réécrivons les équations (V-14) en tenant compte du niveau 4F et en explicitant les coefficients ${}^J \rho_o^o$ en fonction des coefficients G^o et G^1 définis au début de ce chapitre (formule V-4. Tableau I). Nous obtenons :

$$\frac{d}{dt} n(3/2) = 2N^{3/2} P_o^o - [\Gamma_e + \frac{1}{5}(2G^o + 3G^1)] n(3/2) - \frac{2}{5}(G^o - G^1) n(5/2) + \gamma(3/2) n(4F)$$

$$\frac{d}{dt} n(5/2) = \sqrt{6} N^{5/2} P_o^o - [\Gamma_e + \frac{1}{5}(3G^o + 2G^1)] n(5/2) - \frac{3}{5}(G^o - G^1) n(3/2) + \gamma(5/2) n(4F)$$

$$\frac{d}{dt} n(4F) = G_o (n(3/2) + n(5/2)) - [\Gamma_{4F} + \gamma(3/2) + \gamma(5/2)] n(4F)$$

(V-17)

Γ_{4F} représente la durée de vie du niveau 4F, $\gamma(3/2)$ et $\gamma(5/2)$ les probabilités de transition par unité de temps à partir du niveau 4F vers les niveaux $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$. Les équations (V-17) ont été écrites de manière telle que les transferts entre les divers niveaux conservent le nombre d'atomes. Pour écrire la troisième équation nous avons supposé que le quenching (représenté par le coefficient G^0) se fait uniquement vers le niveau 4F. Ceci est légitime dans la mesure où les autres niveaux sont beaucoup plus loin du niveau 4D. (Le niveau le plus proche est le niveau 5P distant de 500 cm^{-1} environ).

En utilisant le principe de microreversibilité, nous pouvons relier $\gamma(3/2)$ et $\gamma(5/2)$ à G^0 . En tenant compte de la dégénérescence des différents niveaux, nous avons :

$$\begin{aligned}\gamma(3/2) &= \frac{2}{7} G^0 e^{+\frac{\Delta E}{kT}} \\ \gamma(5/2) &= \frac{3}{7} G^0 e^{+\frac{\Delta E}{kT}}\end{aligned}\quad (V-18)$$

Nous connaissons maintenant tous les coefficients qui interviennent dans le système V-17. Ce système se résoud alors très simplement lorsqu'on se place en régime stationnaire. Nous éliminons d'abord la population du niveau 4F :

$$n(4F) = \frac{G_0}{\Gamma_{4F} + \frac{5}{7} G^0 e^{+\frac{\Delta E}{kT}}} [n(3/2) + n(5/2)] \quad (V-19)$$

Les populations des deux niveaux $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$ obéissent alors à un système de deux équations. Pour simplifier l'écriture nous faisons apparaître le coefficient G'^0 :

$$G'^0 = \frac{G_0}{1 + \frac{5}{7} \frac{G_0}{\Gamma_{4F}} e^{+\frac{\Delta E}{kT}}} \quad \text{et} : n(4F) = \frac{G'^0}{\Gamma_{(4F)}} [n(3/2) + n(5/2)] \quad (V-20)$$

Nous avons alors les deux équations :

$$\begin{aligned}0 &= 2N^{3/2} P_o^0 - [\Gamma_e + \frac{1}{5}(2G'^0 + 3G^1)] n(3/2) - \frac{2}{5}(G'^0 - G^1) n(5/2) \\ 0 &= \sqrt{6} N^{5/2} P_o^0 - [\Gamma_e + \frac{1}{5}(3G'^0 + 2G^1)] n(5/2) - \frac{3}{5}(G'^0 - G^1) n(3/2)\end{aligned}\quad (V-21)$$

Nous voyons que ces deux équations ont exactement la même forme que les deux premières équations du système (V-17), si ce n'est que G^0 est remplacé par G'^0 et que les termes correspondants au niveau 4F sont supprimés. Ceci nous montre que le calcul fait précédemment de la matrice densité (formule V-15) reste valable lorsqu'on tient compte du niveau 4F. Il suffit simplement de remplacer dans l'expression des coefficients J^J, Φ^K le coefficient G^0 par G'^0 (formule V-20). Le remplacement de G^0 par G'^0 est en fait nécessaire pour tenir compte du transfert retour du niveau 4F vers les niveaux $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$. Dans nos expériences cette correction est très importante : dans le cas de l'hélium, pour une pression de l'ordre de 1 torr le rapport G'^0/G^0 n'est déjà plus que de 0,3 environ.

Connaissant maintenant la matrice densité dans l'état excité, nous sommes en mesure de calculer les intensités des raies observées en fluorescence.

3°/ Expression des intensités de fluorescence en fonction de la matrice densité ρ

Dans nos expériences nous n'avons utilisé à la détection que des *polarisations linéaires* : dans ce cas il est bien connu ^(3,4) que l'on n'est sensible qu'à la *population* ($K = 0$) et à l'*alignement* ($K = 2$). Pour alléger l'exposé, le détail des calculs des intensités des raies de fluorescence a été reporté dans l'appendice C et nous donnons simplement le résultat obtenu. La polarisation de détection peut être soit parallèle au faisceau laser (I_{π}) soit perpendiculaire (I_{σ}). Comme nous avons deux raies de fluorescence (5682 Å et 5688 Å - figure V-1) nous avons au total quatre intensités à calculer. Nous donnons simplement le résultat des calculs de l'appendice C :

$$I_{\sigma}(5682) \sim \frac{1}{9} \rho_{00}^{3/2} + \frac{1}{18} \rho_{00}^{3/2}$$

$$I_{\pi}(5682) \sim \frac{1}{9} \rho_{00}^{3/2} - \frac{1}{9} \rho_{00}^{3/2}$$

$$I_{\sigma}(5688) \sim \frac{1}{45} \rho_{00}^{3/2} - \frac{2}{225} \rho_{00}^{3/2} + \frac{1}{5\sqrt{3}} \rho_{00}^{5/2} + \frac{1}{25\sqrt{3}} \rho_{00}^{5/2}$$

$$I_{\pi}(5688) \sim \frac{1}{45} \rho_{00}^{3/2} + \frac{4}{225} \rho_{00}^{3/2} + \frac{1}{5\sqrt{3}} \rho_{00}^{5/2} - \frac{2}{25\sqrt{3}} \rho_{00}^{5/2}$$

Les équations V-15 et V-22 résolvent donc complètement le problème du calcul des intensités des raies de fluorescence. Nous pouvons maintenant présenter le principe des diverses expériences que nous avons faites : mesure du transfert de population, mesure du taux de polarisation en fonction de la pression et enfin mesure du transfert d'alignement. Tous les calculs que nous présentons maintenant se font à partir des équations (V-15) et (V-22) dans lesquelles on a effectué la substitution de G^0 par G'^0 (équation V-20).

4°/ Principe des mesures du transfert de population entre les niveaux $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$

Les intensités des raies de fluorescence dépendent à la fois de la population et de l'alignement dans l'état excité. Cependant, pour faire apparaître seulement la population, il est classique de faire les combinaisons linéaires suivantes :

$$2 I_{\sigma} (5682) + I_{\pi} (5682) \sim \frac{1}{3} \rho_{\sigma}^0 \quad (V-23)$$

$$2 I_{\sigma} (5688) + I_{\pi} (5688) \sim \frac{1}{15} \rho_{\sigma}^0 + \frac{\sqrt{6}}{5} \rho_{\pi}^0 \quad (V-24)$$

Le principe des mesures de transfert de population est le suivant : nous excitions par la transition à deux photons l'un des niveaux de structure fine (soit le niveau $4D_{3/2}$, soit le niveau $4D_{5/2}$) et nous regardons comment évolue en fonction de la pression l'intensité relative des deux raies de fluorescence à 5682 Å et 5688 Å. En effet le niveau $4D_{5/2}$ se désexcite seulement vers le niveau $3P_{3/2}$ (fluorescence à 5688 Å) et le niveau $4D_{3/2}$ se désexcite principalement (cinq chances sur six) vers le niveau $3P_{1/2}$ (fluorescence à 5682 Å). Dans ces conditions le rapport des intensités des deux raies du spectre de fluorescence à 5688 Å et 5682 Å est directement relié au rapport des populations des niveaux $4D_{5/2}$ et $4D_{3/2}$.

Pour étudier quantitativement l'évolution du rapport des intensités des deux raies de fluorescence, nous formons le rapport R :

$$R = \frac{2 I_{\sigma} (5688) + I_{\pi} (5688)}{2 I_{\sigma} (5682) + I_{\pi} (5682)} \quad (V-25)$$

Ce rapport s'écrit simplement à partir des coefficients de la matrice densité (équations V-23 et V-24) :

$$R = \frac{1}{5} + \frac{3\sqrt{6}}{5} \frac{{}^{5/2}\rho_o^o}{{}^{3/2}\rho_o^o} \quad (V-26)$$

Soit en utilisant l'expression (V-15) des coefficients ${}^{5/2}\rho_o^o$ et ${}^{3/2}\rho_o^o$:

$$R = \frac{1}{5} + \frac{3\sqrt{6}}{5} \times \frac{(\Gamma_e + \frac{3}{2}\Phi^o) {}^{5/2}P_o^o - \frac{3}{2}\Phi^o {}^{3/2}P_o^o}{(\Gamma_e + \frac{5}{2}\Phi^o) {}^{3/2}P_o^o - \frac{3}{2}\Phi^o {}^{5/2}P_o^o} \quad (V-27)$$

Nous devons maintenant distinguer les deux cas possibles selon qu'on excite le niveau $4D_{3/2}$ ou le niveau $4D_{5/2}$.

a) Excitation du niveau $4D_{3/2}$

On a dans ce cas : ${}^{5/2}P_o^o = 0$. L'expression (V-27) se simplifie ; si nous appelons $R(3/2)$ la valeur du rapport R dans le cas particulier de l'excitation du niveau $4D_{3/2}$ nous avons :

$$R(3/2) = \frac{1}{5} - \frac{3\sqrt{6}}{5} \frac{\frac{3}{2}\Phi^o}{\Gamma_e + \frac{5}{2}\Phi^o} \quad (V-28)$$

Ce rapport peut s'exprimer en fonction des coefficients G'^o et G^1 (tableau I) :

$$R(3/2) = \frac{\Gamma_e - 3G'^o + 4G^1}{5\Gamma_e + 3G'^o + 2G^1} = \frac{\Gamma_e + G'^o + 4(G^1 - G'^o)}{5(\Gamma_e + G'^o) + 2(G^1 - G'^o)} \quad (V-29)$$

b) Excitation du niveau $4D_{5/2}$

On a dans ce cas : ${}^{3/2}P_o^o = 0$. Si $R(5/2)$ est la valeur du rapport R dans ce cas particulier, on a alors :

$$R(5/2) = \frac{1}{5} - \frac{3\sqrt{6}}{5} \times \frac{\Gamma_e + \frac{3}{2}\Phi^o}{\frac{3}{2}\Phi^o} \quad (V-30)$$

Soit en fonction de G'^0 et G^1 :

$$R(5/2) = \frac{3\Gamma_e + G'^0 + 2G^1}{G^1 - G'^0} = \frac{3(\Gamma_e + G'^0) + 2(G^1 - G'^0)}{G^1 - G'^0} \quad (V-31)$$

Nous voyons donc que la mesure des rapports $R(3/2)$ et $R(5/2)$ va nous permettre de remonter aux coefficients G'^0 et G^1 . Cependant les relations (V-29) et (V-31) nous montrent que ces deux rapports $R(3/2)$ et $R(5/2)$ ne dépendent en fait que du coefficient $(G^1 - G'^0) / \Gamma_e + G'^0$. Pour une pression donnée, les deux mesures de $R(3/2)$ et $R(5/2)$ ne sont pas indépendantes et l'on a la relation :

$$R(3/2) = \frac{R(5/2) + 10}{5R(5/2) - 4} \quad (V-32)$$

Cette relation exprime simplement le principe de microreversibilité : il est équivalent de peupler le niveau $4D_{3/2}$ et de regarder le transfert vers le niveau $4D_{5/2}$ ou bien de faire l'inverse. Pour mesurer indépendamment les coefficients G'^0 et G^1 il est nécessaire d'étudier la variation de $R(3/2)$ en fonction de la pression. Cependant cette méthode est peu précise et nous avons procédé différemment. Nous avons d'abord mesuré directement le transfert vers le niveau $4F$ (c'est-à-dire G^0) en regardant la fluorescence à partir de ce niveau (cette expérience est décrite dans la troisième partie de ce chapitre, § 2°). Connaissant la valeur de G^0 l'étude des rapports $R(3/2)$ et $R(5/2)$ nous permet de déduire G^1 .

5°/ Principe des mesures de relaxation de l'alignement

L'excitation à deux photons crée de l'alignement dans l'état excité et, en absence de collisions, les raies de fluorescence que nous observons sont fortement polarisées. Lorsqu'il y a des collisions, celles-ci provoquent des transferts entre sous-niveaux Zeeman et le taux de polarisation de la lumière de fluorescence diminue. Nous voyons donc que la mesure du taux de polarisation de la lumière de fluorescence en fonction de la pression va nous permettre d'étudier la relaxation de l'alignement dans l'état excité.

Expérimentalement nous avons mesuré des taux de polarisation T :

$$T = \frac{I_{\sigma} - I_{\pi}}{I_{\sigma} + I_{\pi}} \quad (\text{V-33})$$

Cependant, pour interpréter les expériences, il vaut mieux utiliser la quantité U :

$$U = \frac{I_{\sigma} - I_{\pi}}{2I_{\sigma} + I_{\pi}} \quad (\text{V-34})$$

En effet le numérateur de cette expression ne dépend que de l'alignement et le dénominateur ne dépend que de la population. Cette quantité se calcule facilement à partir du taux de polarisation :

$$U = \frac{2T}{3 + T} \quad (\text{V-35})$$

Pour mesurer la relaxation de l'alignement à l'intérieur des niveaux $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$ nous avons fait deux expériences distinctes :

- excitation du niveau $4D_{3/2}$ et mesure du taux de polarisation de la raie de fluorescence à 5682 Å ;
- excitation du niveau $4D_{5/2}$ et mesure du taux de polarisation de la raie de fluorescence à 5688 Å.

Nous présentons maintenant les calculs qui permettent d'interpréter simplement ces deux expériences :

a) Excitation du niveau $4D$, $J = 3/2$

Dans ce cas, nous mesurons le taux de polarisation de la lumière de fluorescence à 5682 Å. Nous nous intéressons donc à la quantité U (5682 Å) :

$$U (5682 \text{ \AA}) = \frac{I_{\sigma} (5682) - I_{\pi} (5682)}{2I_{\sigma} (5682) + I_{\pi} (5682)} \quad (\text{V-36})$$

Nous pouvons exprimer cette quantité en fonction de la matrice densité (équations V-22) :

$$U (5682 \text{ \AA}) = \frac{3/2 \rho_o^2}{2 \cdot 3/2 \rho_o^o} \quad (\text{V-37})$$

Cette expression est indépendante de l'excitation choisie. Dans le cas particulier de l'excitation du niveau $4D_{3/2}$ ($^{5/2}P_o^K = 0$), nous pouvons exprimer U (5682) en fonction des coefficients de relaxation J, Φ^K et d'excitation $^{3/2}P_o^K$ (équations V-15). Nous avons :

$$U(5682 \text{ \AA}) = \frac{^{3/2}P_o^2}{2 \ ^{3/2}P_o} \times \frac{\Gamma_e + \frac{5}{2}\Phi^2}{(\Gamma_e + \frac{5}{2}\Phi^2)(\Gamma_e + \frac{3}{2}\Phi^2) - (\frac{3}{2}\Phi^2)^2} \times \frac{(\Gamma_e + \frac{5}{2}\Phi^0)(\Gamma_e + \frac{3}{2}\Phi^0) - (\frac{3}{2}\Phi^0)^2}{\Gamma_e + \frac{5}{2}\Phi^0} \quad (V-38)$$

L'expression ci-dessus est le produit de trois facteurs :

- Le premier facteur ne dépend que de l'excitation. Les coefficients d'excitation J, P_o^K sont calculés dans l'appendice C. Dans ce cas on a :

$$\frac{^{3/2}P_o^2}{^{3/2}P_o} = 1 \quad (V-39)$$

- Le second facteur ne fait intervenir que l'alignement dans l'état excité. C'est ce facteur qui nous intéresse.

- Le troisième facteur dépend seulement des populations. Nous le calculons à partir des mesures précédentes de transfert de population (mesure de G'^0 et G^1). On a en effet (paragraphe I - 3° - Tableau I) :

$$\frac{(\frac{5}{2}\Phi^0 + \Gamma_e)(\Gamma_e + \frac{3}{2}\Phi^0) - (\frac{3}{2}\Phi^0)^2}{\Gamma_e + \frac{5}{2}\Phi^0} = \frac{\Gamma_e^2 + \Gamma_e(G'^0 + G^1) + G'^0 G^1}{\Gamma_e + \frac{1}{5}(3G'^0 + 2G^1)} \quad (V-40)$$

Pour éliminer les variations de U (5682 Å) correspondant à la relaxation des populations, nous formons la quantité $A(3/2)$:

$$A(3/2) = \frac{1}{2} \times \frac{\Gamma_e^2 + \Gamma_e(G'^0 + G^1) + G'^0 G^1}{\Gamma_e^2 + \frac{1}{5}\Gamma_e(3G'^0 + 2G^1)} \times \frac{1}{U(5682 \text{ \AA})} \quad (V-41)$$

A(3/2) dépend alors *uniquement* de la relaxation de l'alignement :

$$A(3/2) = 1 + \frac{3/2 \phi^2}{\Gamma_e} - \frac{(3/2 \phi^2)^2}{\Gamma_e (\Gamma_e + 5/2 \phi^2)} \quad (V-42)$$

Nous pouvons donner maintenant une expression approchée de A(3/2). En effet, dans nos expériences, le transfert d'alignement est petit par rapport à la relaxation et l'alignement, c'est-à-dire :

$$\frac{3/2 \phi^2}{5/2} \ll \frac{5/2 \phi^2}{5/2}, \quad \frac{3/2 \phi^2}{3/2} \quad (V-43)$$

Comme nous le verrons, le cas le plus défavorable vis-à-vis de cette hypothèse, est celui de l'hélium : dans ce cas le transfert d'alignement est de l'ordre du dixième de la relaxation de l'alignement. Dans ces conditions nous voyons que nous faisons *une erreur inférieure à 1 % en négligeant le transfert d'alignement*, c'est-à-dire le dernier terme de l'expression V-42. On a donc :

$$A(3/2) \approx 1 + \frac{3/2 \phi^2}{\Gamma_e} = 1 + \frac{3/2}{3/2} f^2 p \quad (V-44)$$

Dans cette expression nous avons utilisé les coefficients de relaxation réduits J, f^K définis par :

$$\frac{J}{J'} \phi^K = \frac{J}{J'} f^K \Gamma_e p \quad p \text{ étant la pression de gaz étranger} \quad (V-45)$$

Les variations de A(3/2) sont linéaires en fonction de la pression. La pente de cette droite est le coefficient de relaxation de l'alignement à l'intérieur du niveau 4D, $J = 3/2$. Nous avons donc ainsi une méthode qui permet de mesurer le coefficient de relaxation de l'alignement $\frac{3/2 \phi^2}{3/2}$ à partir des variations du taux de polarisation en fonction de la pression.

b) Excitation du niveau 4D, $J = 5/2$

Dans ce cas nous nous intéressons au taux de polarisation de la lumière de fluorescence à 5688 Å. Le cheminement que nous allons suivre est le même que ci dessus. Nous considérons d'abord le rapport U (5688 Å) :

$$U(5688 \text{ \AA}) = \frac{I_{\sigma}(5688) - I_{\pi}(2688)}{2 I_{\sigma}(5688) + I_{\pi}(5688)} \quad (\text{V-46})$$

Nous exprimons $U(5688 \text{ \AA})$ en fonction de la matrice densité (équation V-22) :

$$U(5688 \text{ \AA}) = \frac{\frac{\sqrt{21}}{5} \rho_o^{5/2} - \frac{2}{15} \rho_o^{3/2}}{\sqrt{6} \rho_o^{5/2} + \frac{1}{3} \rho_o^{3/2}} \quad (\text{V-47})$$

Cette expression dépend à la fois de l'alignement (numérateur) et de la population (dénominateur). Dans le cas de l'excitation du niveau $4D_{5/2}^{3/2}$ ($\rho_o^K = 0$) elle s'exprime en fonction des coefficients de relaxation J, Φ^K et des coefficients d'excitation J, P_o^K :

$$U(5688 \text{ \AA}) = \frac{\rho_o^{5/2}}{\rho_o^{5/2}} \times \frac{\frac{\sqrt{21}}{5} (\Gamma_e + \frac{3}{2} \Phi^2) + \frac{2}{15} \frac{3}{2} \Phi^2}{(\Gamma_e + \frac{3}{2} \Phi^2)(\Gamma_e + \frac{5}{2} \Phi^2) - (\frac{3}{2} \Phi^2)^2} \times \frac{(\Gamma_e + \frac{3}{2} \Phi^0)(\Gamma_e + \frac{5}{2} \Phi^0) - (\frac{3}{2} \Phi^0)^2}{\sqrt{6} (\Gamma_e + \frac{3}{2} \Phi^0) - \frac{1}{3} \frac{3}{2} \Phi^0} \quad (\text{V-48})$$

Cette expression est le produit de trois facteurs :

- Le premier dépend seulement de l'excitation. Les coefficients J, P_o^K sont calculés dans l'appendice C et l'on a :

$$\frac{\rho_o^{5/2}}{\rho_o^{5/2}} = 2 \sqrt{\frac{2}{7}} \quad (\text{V-49})$$

- Le second facteur dépend seulement des coefficients de relaxation de l'alignement. C'est ce facteur qui nous intéresse.

- Le dernier facteur ne dépend que des coefficients de relaxation de la population. Nous pouvons le calculer à partir des mesures de transfert de population (mesure de G^0 et G^1). On a (paragraphe I - 3° - Tableau I) :

$$\frac{(\Gamma_e + \frac{3}{2} \Phi^0)(\Gamma_e + \frac{5}{2} \Phi^0) - (\frac{3}{2} \Phi^0)^2}{\sqrt{6} (\Gamma_e + \frac{3}{2} \Phi^0) - \frac{1}{3} \frac{3}{2} \Phi^0} = \frac{\Gamma_e^2 + \Gamma_e (G^0 + G^1) + G^0 G^1}{\sqrt{6} [\Gamma_e + \frac{1}{3} (G^0 + 2G^1)]} \quad (\text{V-50})$$

Pour éliminer les variations de U (5688 Å) correspondant à la relaxation de la population, nous formons la quantité $A(5/2)$:

$$A(5/2) = \frac{2}{5} \times \frac{\Gamma_e^2 + \Gamma_e (G'^0 + G^1) + G'^0 G^1}{\Gamma_e^2 + \frac{1}{3} \Gamma_e (G'^0 + 2G^1)} \times \frac{1}{U(5688 \text{ Å})} \quad (\text{V-51})$$

Cette quantité ne dépend que des coefficients de relaxation de l'alignement :

$$A(5/2) = \frac{(\Gamma_e + \frac{3}{2} \phi^2)(\Gamma_e + \frac{5}{2} \phi^2) - (\frac{3}{2} \phi^2)^2}{\Gamma_e (\Gamma_e + \frac{3}{2} \phi^2 + \frac{2}{3\sqrt{21}} \frac{3}{2} \phi^2)} \quad (\text{V-52})$$

Comme précédemment, cette expression se simplifie lorsqu'on tient compte du fait que le transfert d'alignement est petit devant la relaxation de l'alignement (condition V-43). L'erreur commise est dans ce cas inférieure à 0,5 %. Vu la précision de nos mesures nous utiliserons par la suite l'expression approchée suivante :

$$A(5/2) \approx 1 + \frac{\frac{5}{2} \phi^2}{\Gamma_e} = 1 + \frac{5}{2} f^2 p \quad (\text{V-53})$$

Les variations de $A(5/2)$ sont linéaires en fonction de la pression, la pente de la droite étant le coefficient de relaxation de l'alignement à l'intérieur du niveau $J = 5/2$.

En conclusion, nous voyons que l'étude des variations des quantités $A(3/2)$ et $A(5/2)$ permet la mesure des coefficients de relaxation de l'alignement $\frac{3}{2} f^2$ et $\frac{5}{2} f^2$.

6°/ Principe de la mesure du transfert d'alignement

La mesure du transfert d'alignement se fait simplement lorsqu'on excite le niveau 4D, $J = 5/2$. Comme nous l'avons déjà vu en absence de collisions, ce niveau fluoresce uniquement vers le niveau $3P_{3/2}$ à 5688 Å. La raie de fluorescence qui apparaît à 5682 Å lorsqu'il y a des collisions est donc totalement due au transfert vers le niveau 4D, $J = 3/2$. Dans ces conditions

la mesure du taux de polarisation de cette raie à 5682 Å est directement reliée au coefficient de transfert d'alignement $\frac{3}{2} \phi^2$.

Dans ce cas il est intéressant de considérer le rapport V défini ci-après :

$$V = \frac{I_{\sigma}(5682) - I_{\pi}(5682)}{I_{\sigma}(5688) - I_{\pi}(5688)} \quad (\text{V-54})$$

Ce rapport peut s'écrire en fonction de la matrice densité (formule V-22) :

$$V = \frac{25 \frac{3}{2} \rho_o^2}{6\sqrt{21} \frac{5}{2} \rho_o^2 - 4 \frac{3}{2} \rho_o^2} \quad (\text{V-55})$$

Cette expression ne fait intervenir que des coefficients relatifs à l'alignement. Dans le cas particulier de l'excitation du niveau $4D_{5/2} \left(\frac{3}{2} P^K = 0 \right)$ ce rapport s'écrit en fonction des coefficients de relaxation J, ϕ^2 (équation V-15) :

$$V(5/2) = - \frac{25 \frac{3}{2} \phi^2}{4 \frac{3}{2} \phi^2 + 6\sqrt{21} (\Gamma_e + \frac{3}{2} \phi^2)} \quad (\text{V-56})$$

Nous connaissons le coefficient $\frac{3}{2} \phi^2$ par les mesures précédentes de taux de polarisation. On en déduit que la mesure du rapport V permet d'obtenir le coefficient de transfert d'alignement $\frac{3}{2} \phi^2$.

Nous en avons maintenant fini avec ces calculs d'intensité de raies. Nous pouvons présenter en conclusion de ce paragraphe la démarche que nous avons suivie expérimentalement.

7°/ Conclusion : Déroulement des expériences

Les différents types d'expériences que nous avons faites sont les suivants.

a) Mesure du transfert de population vers le niveau 4F

Nous avons observé directement le transfert vers le niveau 4F en

observant la fluorescence à partir de ce niveau. En comparant les intensités des raies de fluorescence issues du niveau 4F à celles issues du niveau 4D nous pouvons déduire le transfert de population entre ces deux niveaux. Ces expériences sont décrites dans la troisième partie de ce chapitre (§ III - 2°). Nous mesurons ainsi le coefficient G^0 (cf. équation V-20 du § II - 2°).

b) Mesure du transfert de population entre les niveaux $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$

Pour cela nous mesurons successivement les intensités I_{σ} et I_{π} des raies à 5682 Å et 5688 Å. Nous en déduisons les rapports $R(3/2)$ et $R(5/2)$ (formules V-29 et V-31 du § 4°). Comme nous l'avons vu, ces deux rapports ne sont pas indépendants : pour une pression donnée ils dépendent en fait du seul coefficient $\frac{G^I - G^{I0}}{\Gamma_e + G^{I0}}$. La mesure précédente nous donne G^0 et nous en déduisons donc G^I . Les résultats expérimentaux sont présentés dans la troisième partie de ce chapitre (§ III - 3°).

c) Mesure des taux de polarisation des raies de fluorescence

Nous avons mesuré le taux de polarisation des raies à 5682 Å et 5688 Å en excitant le niveau $4D_{5/2}$, et celui de la raie à 5682 Å en excitant le niveau $4D_{3/2}$. Lorsqu'on connaît les coefficients de relaxation relatifs à la population, ces mesures permettent de remonter aux coefficients de relaxation et de transfert d'alignement $\frac{5/2}{5/2} \phi^2$, $\frac{3/2}{3/2} \phi^2$ et $\frac{3/2}{5/2} \phi^2$ (cf. partie II - § 5° et 6°). Ces expériences seront présentées dans la partie IV de ce chapitre.

d) Mesure de la relaxation de l'alignement par effet Hanle

Nous avons contrôlé les mesures précédentes de relaxation d'alignement dans un cas particulier en utilisant l'effet Hanle. Cette expérience est décrite dans la partie V de ce chapitre.

e) Calcul des coefficients G^k

Les coefficients de relaxation de l'alignement $\frac{5/2}{5/2} \phi^2$, $\frac{3/2}{3/2} \phi^2$ et

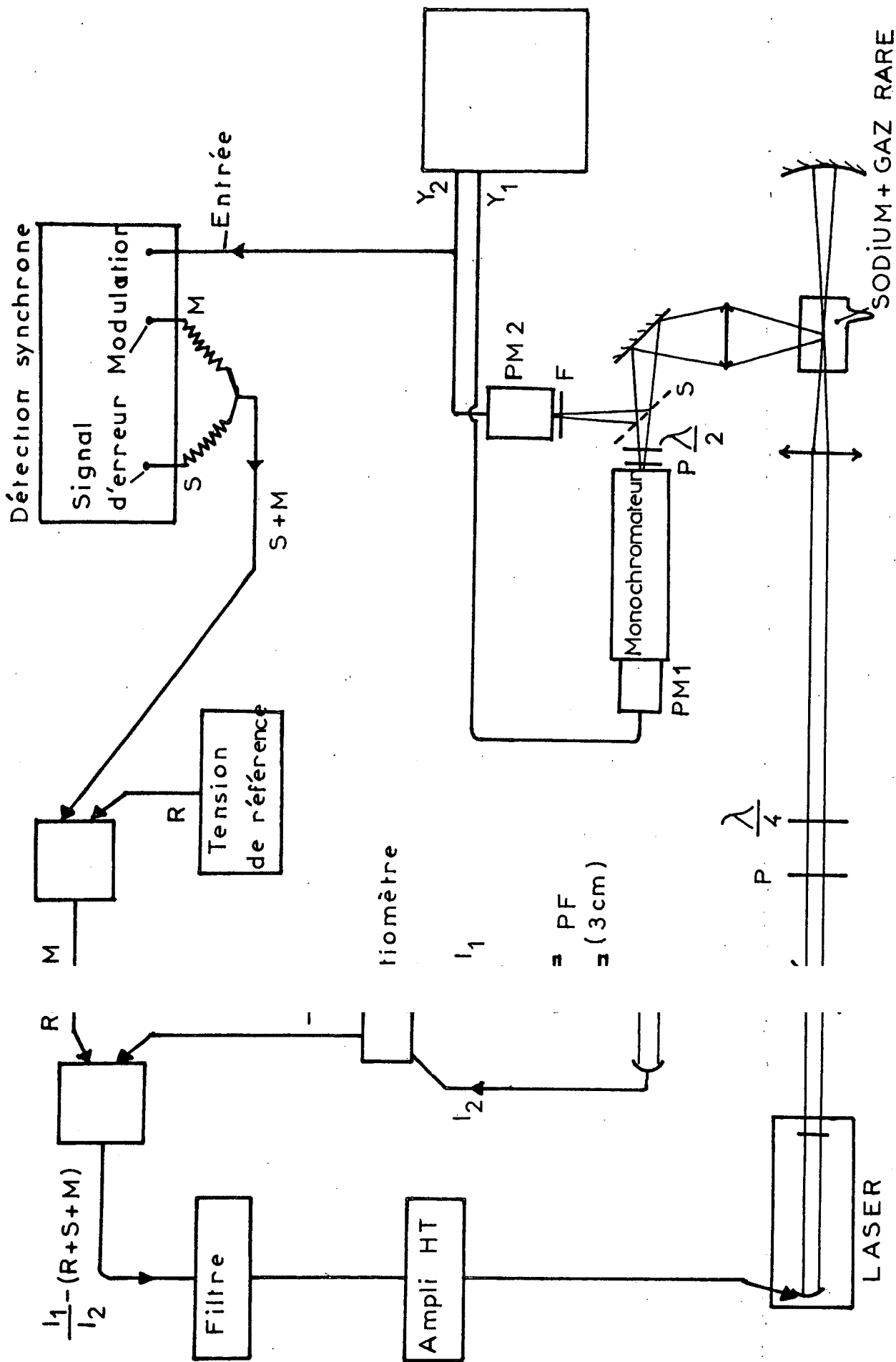


Figure V-4

$\frac{3}{2} \phi^2$ dépendent des coefficients G^1 , G^2 et G^3 . Si on tient compte de la mesure de G^1 par transfert de population (§ b), nous avons donc mesuré quatre grandeurs qui dépendent des trois coefficients G^1 , G^2 et G^3 ce qui nous permet une vérification. Nos mesures permettent donc de remonter aux valeurs de ces trois coefficients. Les résultats sont présentés dans la dernière partie de ce chapitre.

III - MESURES DES TRANSFERTS DE POPULATION A PARTIR DES INTENSITES

DE FLUORESCENCE

Comme nous venons de le voir (partie II, § 7°) nous devons d'abord mesurer les transferts de population vers le niveau 4F et entre les deux niveaux de structure fine $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$. Pour cela nous avons mesuré successivement I_{σ} et I_{π} de manière à connaître la quantité $2I_{\sigma} + I_{\pi}$. Cela nous a amené à modifier le montage expérimental décrit au chapitre II.

1°/ Modification du montage expérimental

Nous avons fait principalement deux modifications. D'une part nous avons utilisé un deuxième photomultiplicateur pour contrôler les variations d'intensité des raies observées. D'autre part nous avons installé un asservissement qui permet de maintenir la fréquence du laser au centre de la transition à deux photons.

a) Utilisation d'un photomultiplicateur de référence

Le dispositif expérimental est représenté sur la figure V-4. Ce montage est sensiblement le même que celui décrit au chapitre II (figure II-6). La cellule à sodium est montée sur le banc de pompage décrit au chapitre IV. La température de la cellule est d'environ 270°C pour toutes les expériences

décrites dans ce chapitre. D'autre part le faisceau de détection est divisé en deux par une lame séparatrice. Le faisceau direct est envoyé sur un photomultiplicateur (PM1) à travers un monochromateur. Le faisceau réfléchi est envoyé sur un autre photomultiplicateur (PM2) à travers un filtre interférentiel F centré vers 5685 Å (bande passante 20Å). Un polariseur P et une lame $\frac{\lambda}{2}$ placés à l'entrée du monochromateur permettent de sélectionner les intensités I_{σ} ou I_{π} . Le polariseur est fixe et nous tournons à la main la lame $\lambda/2$. L'intérêt de ce montage est que la lumière qui traverse le monochromateur garde toujours la même polarisation. Les signaux des deux photomultiplicateurs sont envoyés sur les voies $Y_1(t)$ et $Y_2(t)$ d'un enregistreur.

b) Asservissement sur le signal à deux photons

Pour faire ces expériences nous devons rester au maximum du signal d'absorption à deux photons de manière à améliorer la stabilité d'intensité des raies. C'est pourquoi nous avons asservi la fréquence du laser sur ce signal, de manière à éviter toute dérive en fréquence.

Le principe de cet asservissement est le suivant. Il se compose en fait de deux boucles d'asservissement :

- Nous conservons d'abord l'asservissement sur le Pérot Fabry de 3 cm tel qu'il est décrit au chapitre II (§ I - 1° b) : le signal de transmission du Pérot Fabry est comparé à une tension R qui sert de référence (figure II - 4a). Le signal transmis à travers l'étalon Pérot Fabry ayant peu de bruit, cet asservissement peut être relativement rapide. Sa principale utilité est de diminuer le jitter du laser. Par contre il n'évite pas les dérives lentes dues à divers effets : variations de pression et de température à l'intérieur du Pérot Fabry de 3 cm et variations d'éclairement du Pérot Fabry.
- La deuxième boucle asservit la fréquence du laser sur le signal d'absorption à deux photons. L'idée de cet asservissement est de corriger les petites dérives de fréquence en faisant varier la tension R qui sert de référence pour l'asservissement précédent. Cela revient en fait à déplacer

le point de fonctionnement A (figure II - 4a) le long de la courbe d'Airy du Pérot Fabry de 3 cm. Ce Pérot Fabry ayant un pic d'Airy large de 150 MHz environ nous pouvons en faisant varier R corriger des dérives de l'ordre de quelques dizaines de MHz.

Le schéma de l'ensemble est donné sur la figure V-4 : la fréquence du laser est légèrement modulée. Il s'ensuit une modulation du signal d'absorption à deux photons recueilli par le PM2. Une détection synchrone permet de mesurer cette modulation. Le signal de sortie S de la détection synchrone nous sert de signal d'erreur : il est additionné à la tension de référence R et le signal de transmission du Pérot Fabry est comparé en fait à la tension $R + S$. Ainsi décrit cet asservissement nous permet de corriger des variations de fréquence de l'ordre de 20 MHz et de rester au maximum du signal d'absorption à deux photons pendant la durée d'un enregistrement (de l'ordre d'un quart d'heure).

Pour faire les expériences nous procédons de la manière suivante. Nous branchons d'abord la première boucle d'asservissement sur le Pérot Fabry de 3 cm. Nous faisons alors varier la fréquence du laser afin de nous placer au sommet de l'une des quatre composantes de la transition 3S - 4D (figure II-8). Nous laissons alors fixe la pression à l'intérieur du Pérot Fabry de 3 cm et nous branchons la deuxième boucle d'asservissement : la fréquence du laser est alors asservie sur le signal à deux photons. Nous pouvons alors analyser en polarisation et en fréquence la lumière de fluorescence reçue par le photomultiplicateur 1, le photomultiplicateur 2 nous permettant de contrôler les variations d'intensité du signal d'absorption à deux photons. Ces variations d'intensité peuvent être très importantes (de l'ordre de 50 % en un quart d'heure). La principale cause de ces variations est l'apparition de taches sur les parois de la cellule à l'endroit où passe le faisceau laser. Ces taches sont dues à l'attaque du verre par le sodium.

Pour pouvoir comparer quantitativement les polarisations parallèle et perpendiculaire au faisceau laser (I_{π} et I_{σ} respectivement) nous avons dû mesurer le taux de transmission du banc d'optique de détection pour ces deux polarisations. Ce banc contient en effet plusieurs éléments qui peuvent

EXCITATION $3S, F=2 \rightarrow 4D, J=\frac{5}{2}$

Spectre de Fluorescence

PRESSION de NEON = 1,29 Torr

x 5

PRESSION NULLE

x 200

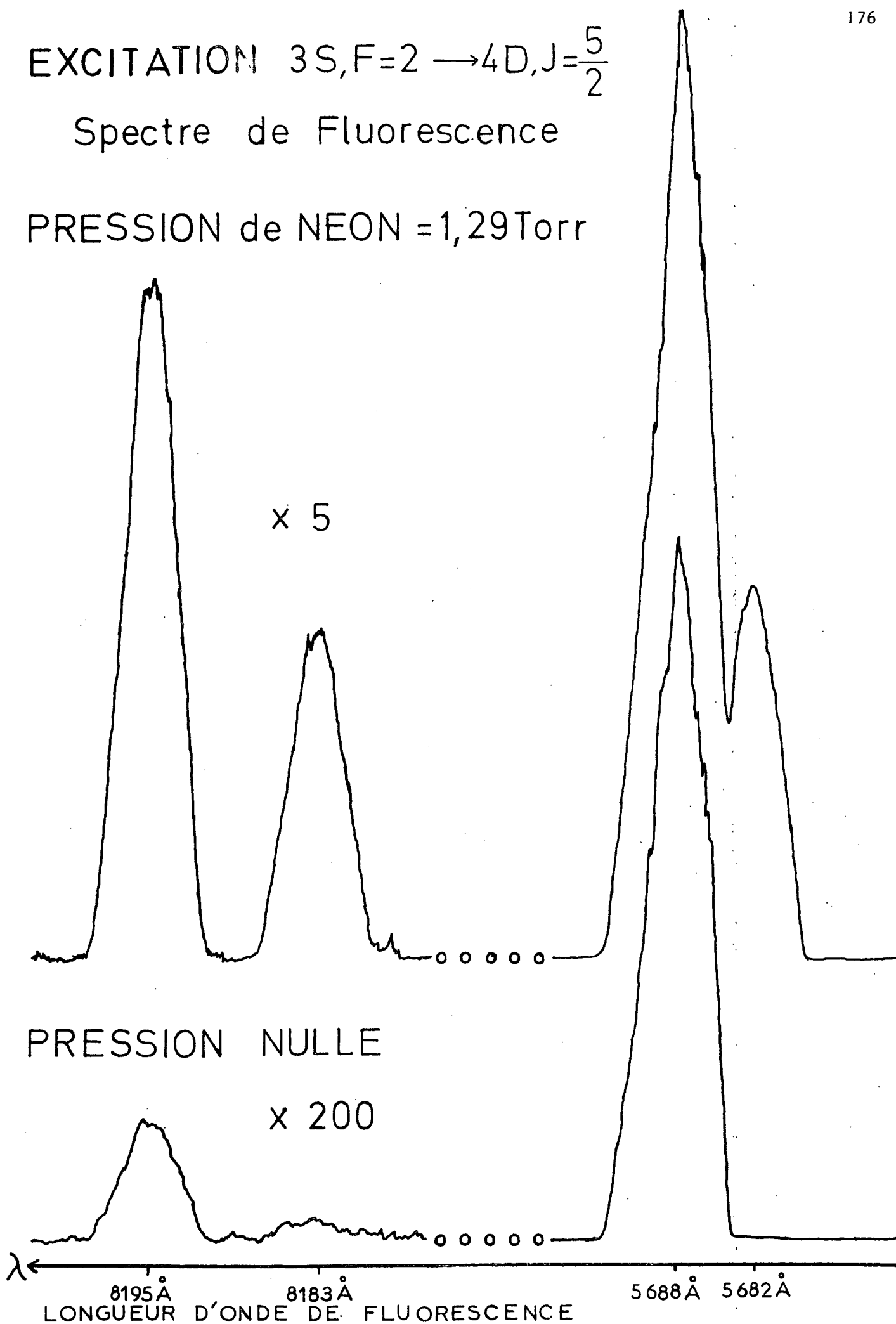


Figure V_5

favoriser l'une ou l'autre de ces polarisations : parois de la cellule à sodium, lentille de détection, miroir de renvoi à 45° et surtout la lame séparatrice inclinée à 45° . Pour faire cette mesure nous nous sommes placés sur la transition à deux photons $3S - 5S$. L'opérateur transition à deux photons est alors un scalaire et la lumière de fluorescence n'est donc pas polarisée. Nous avons pu mesurer ainsi le rapport de transmission des intensités I_σ et I_π (cette correction est très importante, de l'ordre de 60 %).

Le dispositif expérimental que nous venons de décrire nous a permis de faire les mesures de transfert de population vers le niveau $4F$ et entre les deux niveaux de structure fine $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$.

2°/ Transfert vers le niveau $4F$

Le niveau $4F$ étant distant de 40 cm^{-1} des niveaux $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$, les collisions peuvent provoquer un transfert non négligeable vers ce niveau. Avant de faire l'étude détaillée de la relaxation à l'intérieur des niveaux $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$, il était indispensable de mesurer ce transfert. Pour cela nous avons cherché à observer la fluorescence à partir du niveau $4F$: ce niveau retombe à l'état fondamental par la cascade (figure V-1) :



Comme il était difficile d'observer la transition $4F \rightarrow 3D$ à $1,8 \mu$, nous avons regardé les deux transitions $3D \rightarrow 3P_{1/2}$ et $3D \rightarrow 3P_{3/2}$ à 8195 \AA et 8183 \AA respectivement.

La figure V-5 représente le spectre de fluorescence observé lorsqu'on excite le niveau $4D_{5/2}$: nous avons reporté sur cette figure un enregistrement à pression nulle et un enregistrement fait avec une pression de néon de $1,29 \text{ Torr}$ (pression mesurée à 300°K). Cette figure appelle les explications suivantes :

- L'enregistrement des raies à 8183 \AA et 8195 \AA a été fait avec une sensibilité plus grande que celui des raies à 5682 \AA et 5688 \AA : un facteur 200

à pression nulle et un facteur 5 pour l'enregistrement à $p = 1,29$ Torr. Ces facteurs de sensibilité sont simplement ceux indiqués sur l'enregistreur. Pour obtenir un résultat significatif il faut aussi tenir compte du fait que le taux de transmission du banc d'optique et le rendement quantique du photomultiplicateur sont plus faibles au voisinage de 8190 \AA que vers 5688 \AA . Une des principales difficultés de l'expérience va donc être de déterminer le coefficient α qui caractérise les différences de l'efficacité de la détection entre ces deux longueurs d'onde.

- A pression nulle la raie à 5682 \AA n'apparaît pas : comme nous l'avons déjà expliqué cela est dû au fait que la transition $4D_{5/2} \rightarrow 3P_{1/2}$ est interdite. Par contre nous voyons que les deux raies à 8183 \AA et 8195 \AA sont visibles. Elles sont dues à la cascade à partir du niveau $4D_{5/2}$: $4D \rightarrow 4P \rightarrow 3D \rightarrow 3P \rightarrow 3S$. D'après les probabilités de transitions données dans les tables (5), cette cascade doit être 36 fois moins probable que la cascade $4D \rightarrow 3P \rightarrow 3S$. Nous voyons sur la figure V-5 que le rapport observé expérimentalement entre les raies à 8183 \AA et 8195 \AA et la raie à 5688 \AA est bien plus faible. Comme nous venons de le dire, cela tient au fait que le taux de transmission du banc d'optique de détection et le rendement quantique du photomultiplicateur sont plus faibles au voisinage de 8190 \AA que vers 5688 \AA .
- En présence de néon nous voyons apparaître de manière intense les raies à 5682 \AA , 8183 \AA et 8195 \AA . Ceci indique un transfert du niveau $4D_{5/2}$ vers le niveau $4D_{3/2}$ d'une part, et des niveaux $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$ vers le niveau $4F$.

Nous avons mesuré les rapports des intensités de ces diverses raies de fluorescence pour la polarisation I_{σ} . Les mesures que nous présentons dans le paragraphe suivant permettent de déduire les intensités I_{π} des raies à 5682 \AA et 5688 \AA . Par ailleurs nous avons vérifié que les raies à 8183 \AA et 8195 \AA n'étaient pas polarisées (ceci justifie le fait de négliger le transfert d'alignement vers le niveau $4F$ - cf. § II - 3°). Nous pouvons donc en déduire, à un facteur de proportionnalité près, les variations du rapport des populations du niveau $4F$ $n(4F)$ et du niveau $4D$ $n(4D) = n(3/2) + n(5/2)$:

$$\frac{n(4F)}{n(4D)} = \alpha \frac{2I_{\sigma}(8183) + I_{\pi}(8183) + 2I_{\sigma}(8195) + I_{\pi}(8195)}{2I_{\sigma}(5688) + I_{\pi}(5688) + 2I_{\sigma}(5682) + I_{\pi}(5682)} \quad (V-57)$$

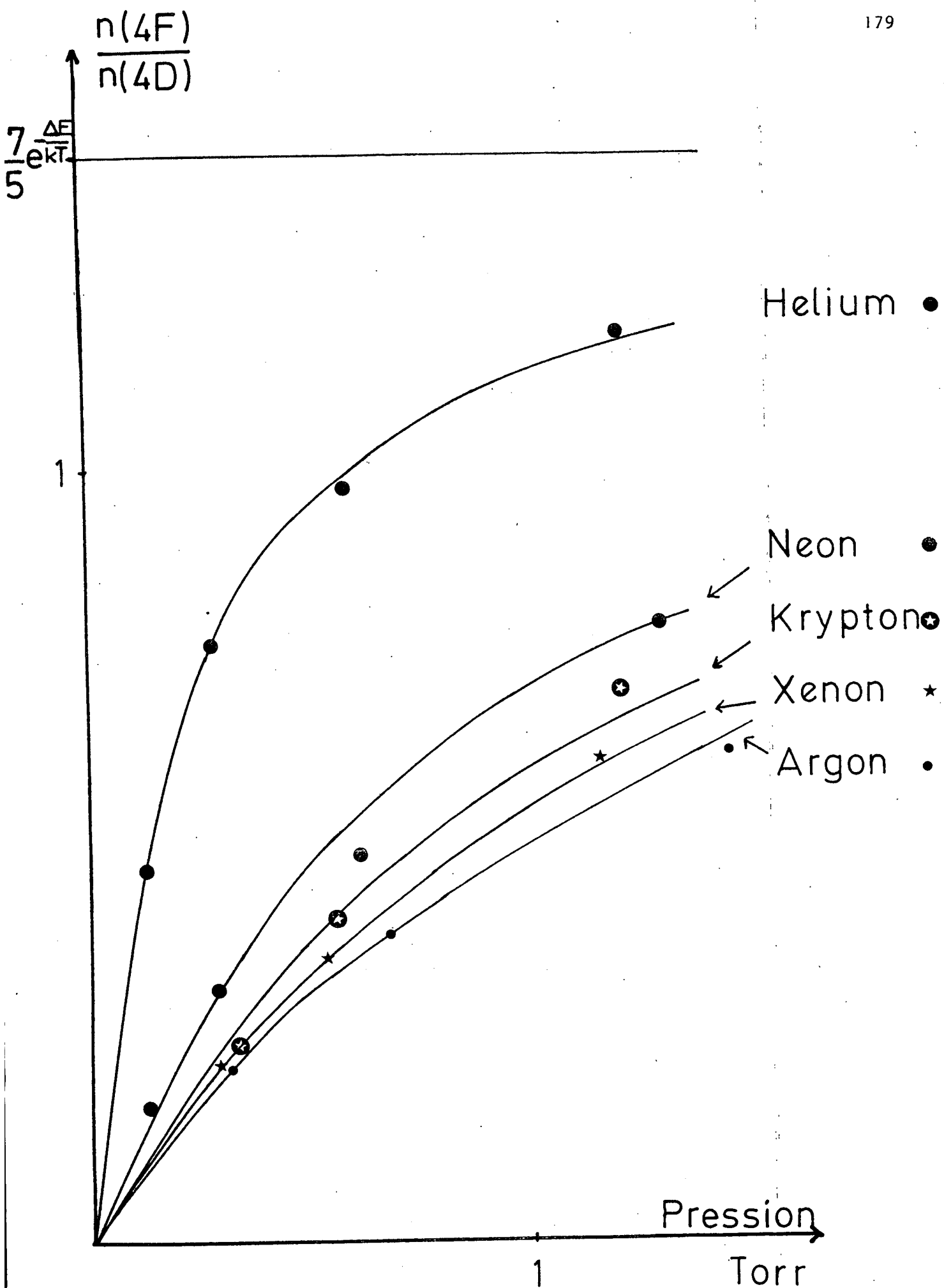
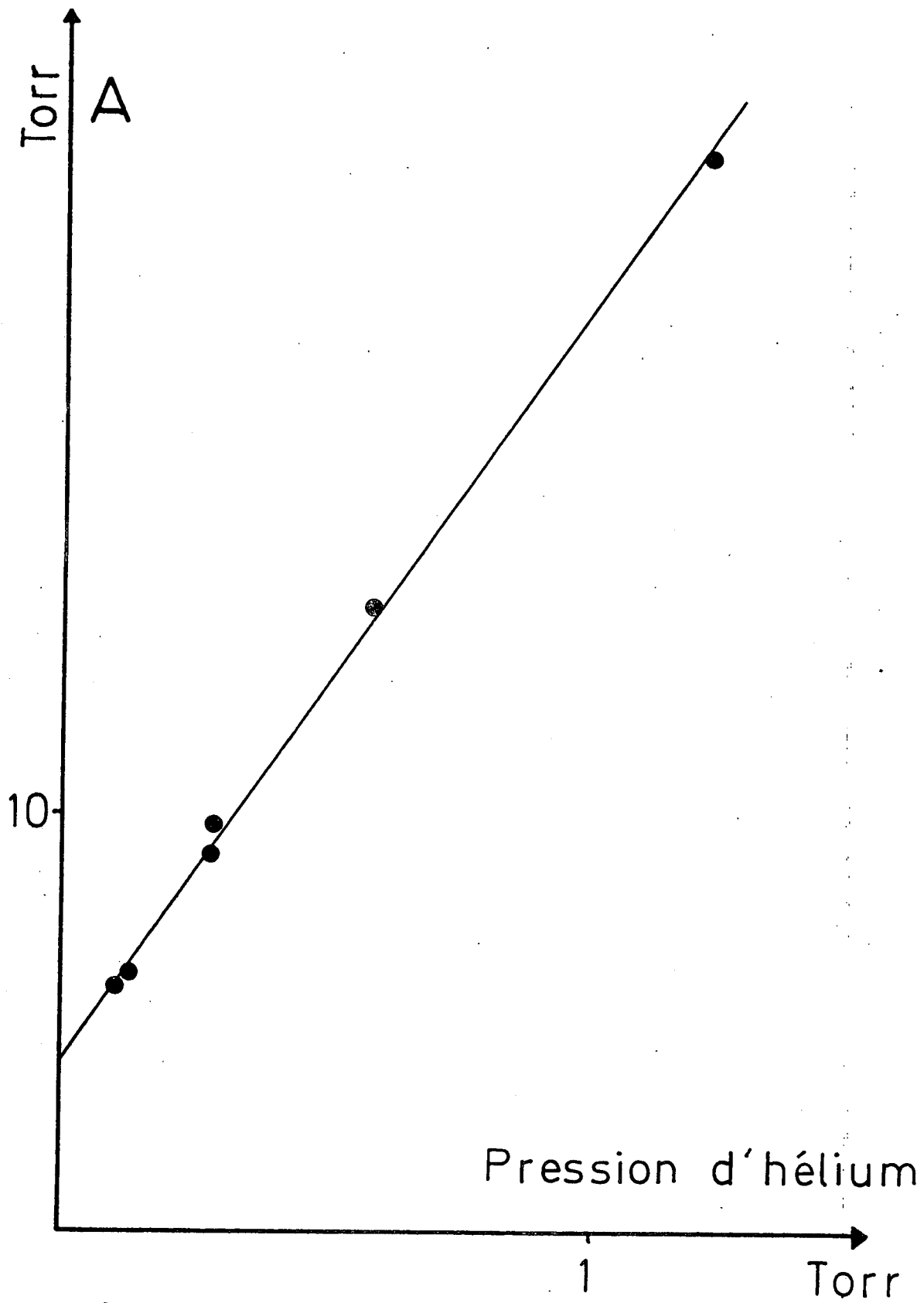


Figure V_6



Dépouillement des mesures de
transfert vers le niveau 4F

Figure V_7

Comme nous l'avons dit ci-dessus, le coefficient α dépend du taux de transmission du banc d'optique et du rendement quantique du photomultiplicateur, ainsi que des rapports de branchement des fluorescences à partir du niveau 4D.

Nous avons représenté sur la figure V-6 la variation en fonction de la pression du rapport $\frac{n(4F)}{n(4D)}$ pour les cinq gaz rares. Ce rapport est proportionnel au rapport des intensités mesurées expérimentalement (équation V-37). Pour pouvoir connaître de manière absolue le rapport $\frac{n(4F)}{n(4D)}$ il faut donc d'abord déterminer le coefficient de proportionnalité α . Nous avons déterminé ce coefficient α en étudiant la forme des courbes de la figure (V-6). L'idée est la suivante : lorsque la pression de gaz étranger devient très grande, le rapport $\frac{n(4F)}{n(4D)}$ tend vers celui obtenu à l'équilibre thermodynamique, c'est-à-dire vers $\frac{7}{5} e^{-\Delta E/kT}$. Les courbes de la figure V-6 ont donc toutes la même asymptote d'ordonnée $\frac{7}{5} e^{-\Delta E/kT}$. De manière quantitative les variations du rapport $\frac{n(4F)}{n(4D)}$ sont données par l'équation (V-19). En faisant apparaître le coefficient de relaxation réduit g^k défini par :

$$G^k = g^k \Gamma_e p \quad (V-58)$$

nous avons :

$$\frac{n(4F)}{n(4D)} = \frac{g^0 \Gamma_e p}{\Gamma_{4F} + \frac{5}{7} g^0 \Gamma_e p e^{+\Delta E/kT}} \quad (V-59)$$

Les courbes de la figure V-6 sont donc des arcs d'hyperboles. Comme il est plus facile de travailler sur des droites, nous formons la quantité $p \frac{n(4D)}{n(4F)}$:

$$p \frac{n(4D)}{n(4F)} = \frac{5}{7} e^{+\frac{\Delta E}{kT}} p + \frac{1}{g^0} \frac{\Gamma_{4F}}{\Gamma_e} \quad (V-60)$$

Nous obtenons une droite dont la pente, indépendante de g^0 , ne dépend que des poids statistiques et de l'écart d'énergie des niveaux 4D et 4F. Cependant ce n'est pas la quantité $p \frac{n(4D)}{n(4F)}$ que nous mesurons expérimentalement mais la quantité A :

$$A = \alpha p \frac{n(4D)}{n(4F)} = p \frac{2[I_{\sigma}(5682) + I_{\sigma}(5688)] + I_{\pi}(5682) + I_{\pi}(5688)}{2[I_{\sigma}(8183) + I_{\sigma}(8195)] + I_{\pi}(8183) + I_{\pi}(8195)} \quad (V-61)$$

La figure (V-7) représente en fonction de la pression dans le cas de l'hélium les variations de A. On a effectivement une droite. La pente de cette droite permet de déduire le coefficient α . De cette manière nous pouvons donner une signification absolue aux courbes de la figure (V-6).

Sur la figure (V-6) les points indiqués correspondent aux mesures expérimentales et les courbes en trait plein sont les courbes théoriques (équation V-59) pour lesquelles nous avons ajusté le paramètre g^0 . Nous voyons que le transfert vers le niveau 4F est beaucoup plus important pour l'hélium que pour les autres gaz rares.

Finalement, nous avons obtenu pour le coefficient g^0 les valeurs numériques suivantes :

| | He | Ne | Ar | Kr | Xe |
|-------|---------------|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| g^0 | $4,1 \pm 1,1$ | $1,05 \pm 0,24$ | $0,56 \pm 0,16$ | $0,71 \pm 0,16$ | $0,63 \pm 0,16$ |

l'unité est le torr⁻¹ mesuré à 300°K. L'erreur relative sur ces résultats est de l'ordre de 25 %. Cette erreur tient à l'imprécision de la mesure de α et aux erreurs sur la mesure des rapports d'intensités (de l'ordre de 5 % à 10 %). Connaissant G^0 nous pouvons maintenant mesurer G^1 en étudiant le transfert de population entre les deux niveaux de structure fine $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$.

3°/ Transfert de population entre les niveaux de structure fine $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$

Le principe de ces mesures a déjà été exposé au début de ce chapitre (§II - 4°). Nous le rappelons brièvement. La transition dipolaire électrique $4D_{5/2} \rightarrow 3P_{1/2}$ étant interdite, le spectre de fluorescence de l'atome dans l'état $4D_{5/2}$ ne comprend que la raie à 5688 Å (cf. figure V-1). Par contre le spectre de fluorescence de l'atome dans l'état $4D_{3/2}$ comprend les deux raies à 5682 Å et 5688 Å, la première de ces raies étant cinq fois plus

intense que la seconde. Nous voyons donc que le rapport des intensités de ces deux raies est directement relié au rapport des populations des niveaux $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$. Pour pouvoir exploiter quantitativement les résultats expérimentaux, nous avons vu que nous devons mesurer le rapport R (équation V-25) :

$$R = \frac{2I_{\sigma}(5688) + I_{\pi}(5688)}{2I_{\sigma}(5682) + I_{\pi}(5682)}$$

(Rappelons que la combinaison linéaire $2I_{\sigma} + I_{\pi}$ ne dépend que de la population et est indépendante de l'alignement).

Nous avons fait les expériences soit en excitant le niveau $4D_{5/2}$ et en regardant le transfert vers le niveau $4D_{3/2}$ (mesure du rapport $R(5/2)$), soit en faisant l'inverse (mesure du rapport $R(3/2)$) :

- Dans le premier cas, l'expérience est celle décrite dans l'introduction de ce chapitre. A pression nulle il n'y a pas de fluorescence à 5682 Å ($R(5/2) = \infty$). Par contre cette fluorescence apparaît en présence de gaz étranger et le rapport $R(5/2)$ tend vers 2 à forte pression (formule V-31).
- Dans le deuxième cas (excitation du niveau $4D_{3/2}$) les deux raies de fluorescence à 5688 Å et 5682 Å existent à pression nulle car le niveau $4D_{3/2}$ peut soit retomber vers le niveau $3P_{1/2}$ (fluorescence à 5682 Å, probabilité de 5/6) soit vers le niveau $3P_{3/2}$ (fluorescence à 5688 Å, probabilité de 1/6). Le rapport $R(3/2)$ va donc varier de 1/5 à pression nulle pour tendre vers 2 à forte pression (formule V-29).

Comme nous l'avons expliqué (§ II - 4°) les mesures de $R(3/2)$ et $R(5/2)$ pour une pression donnée ne sont pas indépendantes et l'on a la relation (équation V-32) :

$$R(3/2) = \frac{R(5/2) + 10}{5R(5/2) - 4} \quad (V-62)$$

Les résultats expérimentaux que nous avons obtenus ont été reportés sur les figures V-8a et V-8b. Ces figures représentent les variations de $R(3/2)$ en

Figure V-8 a

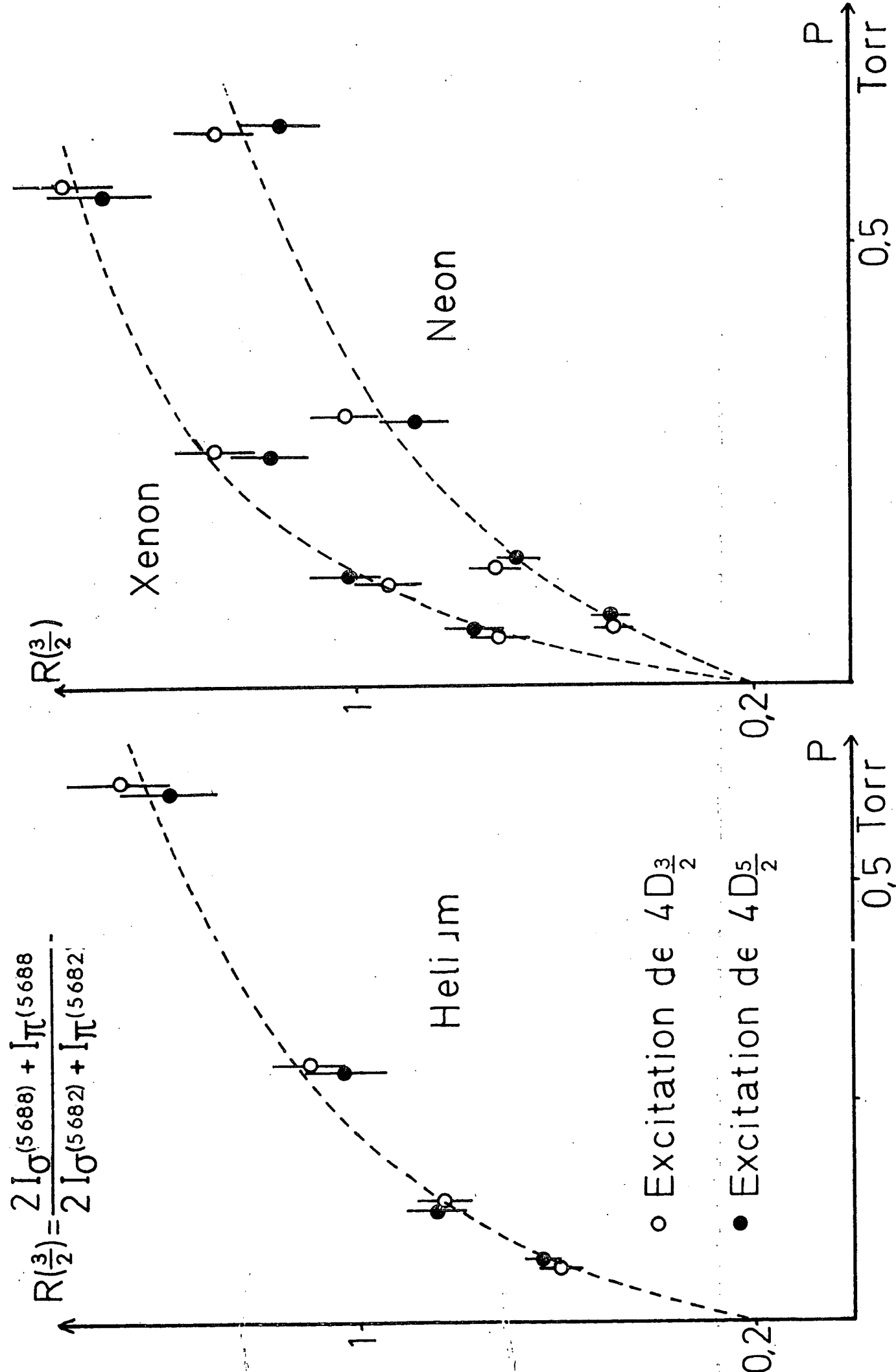
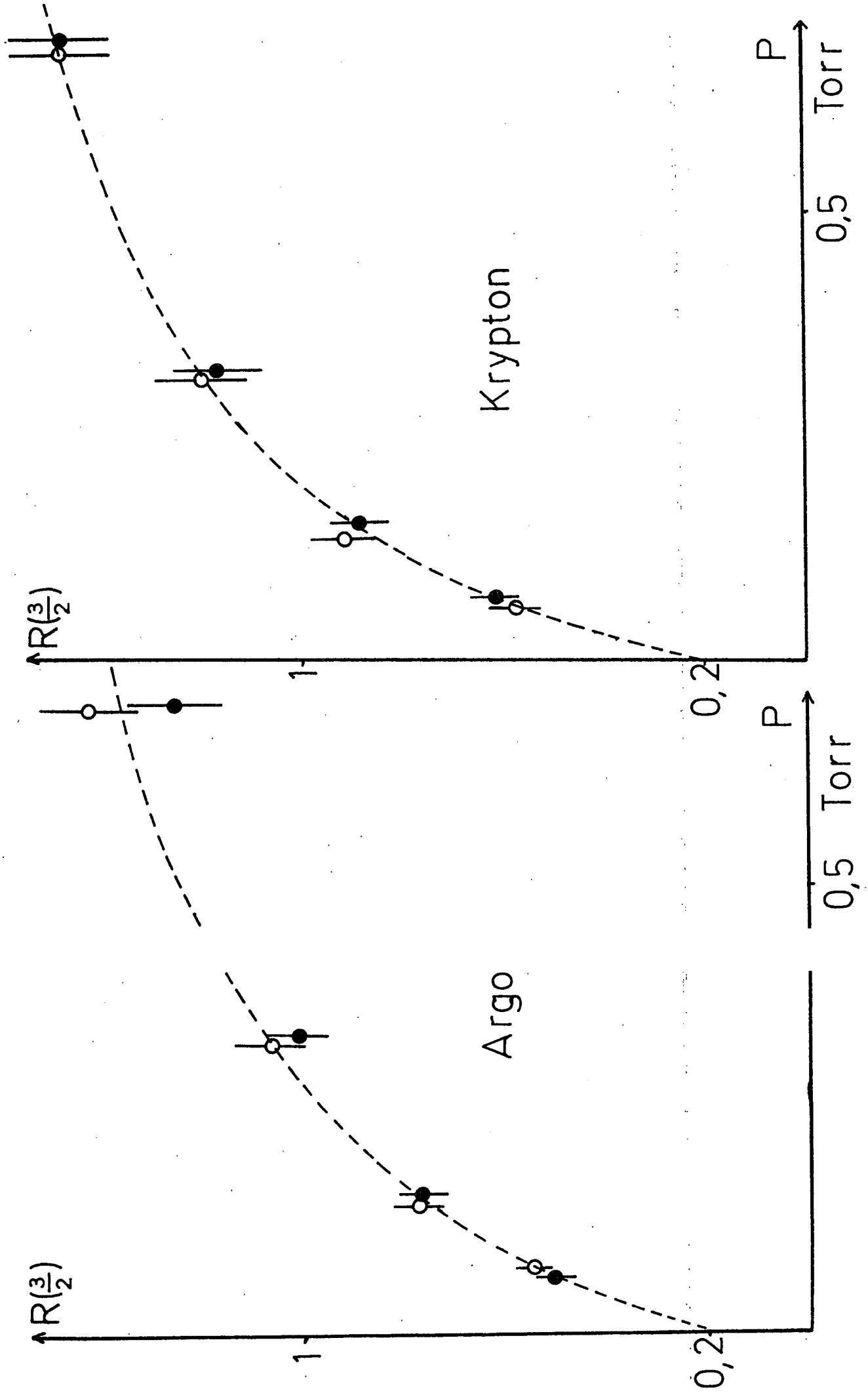


Figure 5 - OD



fonction de la pression lorsqu'on excite le niveau $4D_{3/2}$ et celles du rapport $R(3/2)$ équivalent (défini par la relation V-62) lorsqu'on excite le niveau $4D_{5/2}$. Nous voyons que, dans la limite des marges d'erreurs, les deux mesures donnent le même résultat. Pour faire ces mesures nous avons pris les précautions suivantes :

- Nous avons pris soin pour mesurer l'intensité des raies de soustraire à chaque fois la contribution due au fond d'absorption à deux photons avec élargissement Doppler.
- Nous n'avons pas utilisé la combinaison linéaire $2I_{\sigma} + I_{\pi}$ mais une combinaison linéaire légèrement différente de manière à tenir compte de l'ouverture de l'angle solide de détection. Ce type de correction sera précisé dans le paragraphe suivant (IV - 2° - a).

Malgré cela, il apparaît (sur la figure V-8) que, de manière générale, les points correspondant à l'excitation du niveau $4D_{3/2}$ se trouvent au-dessus de ceux correspondant à l'excitation du niveau $4D_{5/2}$. Ceci est particulièrement net dans le cas du néon et de l'argon. Cet effet est probablement dû à une erreur de mesure systématique dont nous ignorons l'origine.

A partir de ces résultats nous avons obtenus pour g^1 les valeurs numériques suivantes (l'unité est le Torr⁻¹ mesuré à 300°K) en utilisant la valeur de g^0 mesurée précédemment.

| | He | Ne | Ar | Kr | Xe |
|-------|----------------|---------------|---------------|----------------|----------------|
| g^1 | $15,6 \pm 2,2$ | $8,0 \pm 1,3$ | $8,7 \pm 1,1$ | $12,0 \pm 0,9$ | $17,9 \pm 3,1$ |

L'erreur que nous indiquons est de l'ordre de 15 %. Elle tient compte de la dispersion des résultats expérimentaux (celle-ci est assez grande puisque les mesures faites en excitant $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$ ne donnent pas exactement le même résultat) et de l'incertitude due à l'erreur de mesure de g^0 . Cette mesure de g^1 n'est pas définitive. En effet l'étude de la relaxation de l'alignement que nous allons maintenant présenter permet de mesurer les coefficients g^1 , g^2 et g^3 . La comparaison entre les deux résultats sera faite dans la dernière partie de ce chapitre.

IV - ETUDE EXPERIMENTALE DE LA RELAXATION DE L'ALIGNEMENT A PARTIR DES

TAUX DE POLARISATION

Cette étude a été faite en mesurant le taux de polarisation des raies de fluorescence en fonction de la pression. Comme nous l'avons déjà expliqué au paragraphe II, on obtient grâce à ces mesures les coefficients $\frac{3}{2} \phi^2$ et $\frac{5}{2} \phi^2$ de relaxation de l'alignement dans les niveaux $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$ et le coefficient $\frac{5}{2} \phi^2$ de transfert d'alignement entre ces deux niveaux. Nous allons décrire d'abord la méthode utilisée expérimentalement pour mesurer les taux de polarisation. Nous parlerons ensuite des résultats obtenus en absence de gaz rare. Ces résultats sont intéressants dans la mesure où les taux de polarisation mesurés à pression nulle dépendent de la structure hyperfine du niveau 4D. Nous pourrons ainsi en déduire un ordre de grandeur de cette structure hyperfine. Nous présenterons enfin les mesures proprement dites de relaxation de l'alignement en fonction de la pression.

1°/ Montage expérimental pour la mesure des taux de polarisation

Le montage expérimental est sensiblement le même que celui utilisé pour mesurer les transferts de population (§ III - 1° - figure V-4). Il en diffère en deux points :

a) Utilisation d'une lame compensatrice

Le photomultiplicateur de référence PM2 est supprimé. La lame séparatrice semi-réfléchissante S est remplacée par une lame de verre qui joue le rôle de lame compensatrice. Elle a été inclinée de manière telle que les taux de transmission de l'optique de détection soient égaux pour les polarisations σ et π . Ce réglage a été fait en utilisant la lumière de fluorescence réémise après excitation de la transition à deux photons $3S - 5S$: l'opérateur d'excitation est alors un scalaire et la lumière de fluorescence est donc non polarisée. La précision du réglage de l'inclinaison correspond à une erreur inférieure à 1 % sur les mesures de taux de polarisation. Cependant il pour-

TRANSITION $3S, F=2 \rightarrow 4D, J=\frac{5}{2}$ EN PRESENCE D'ARGON

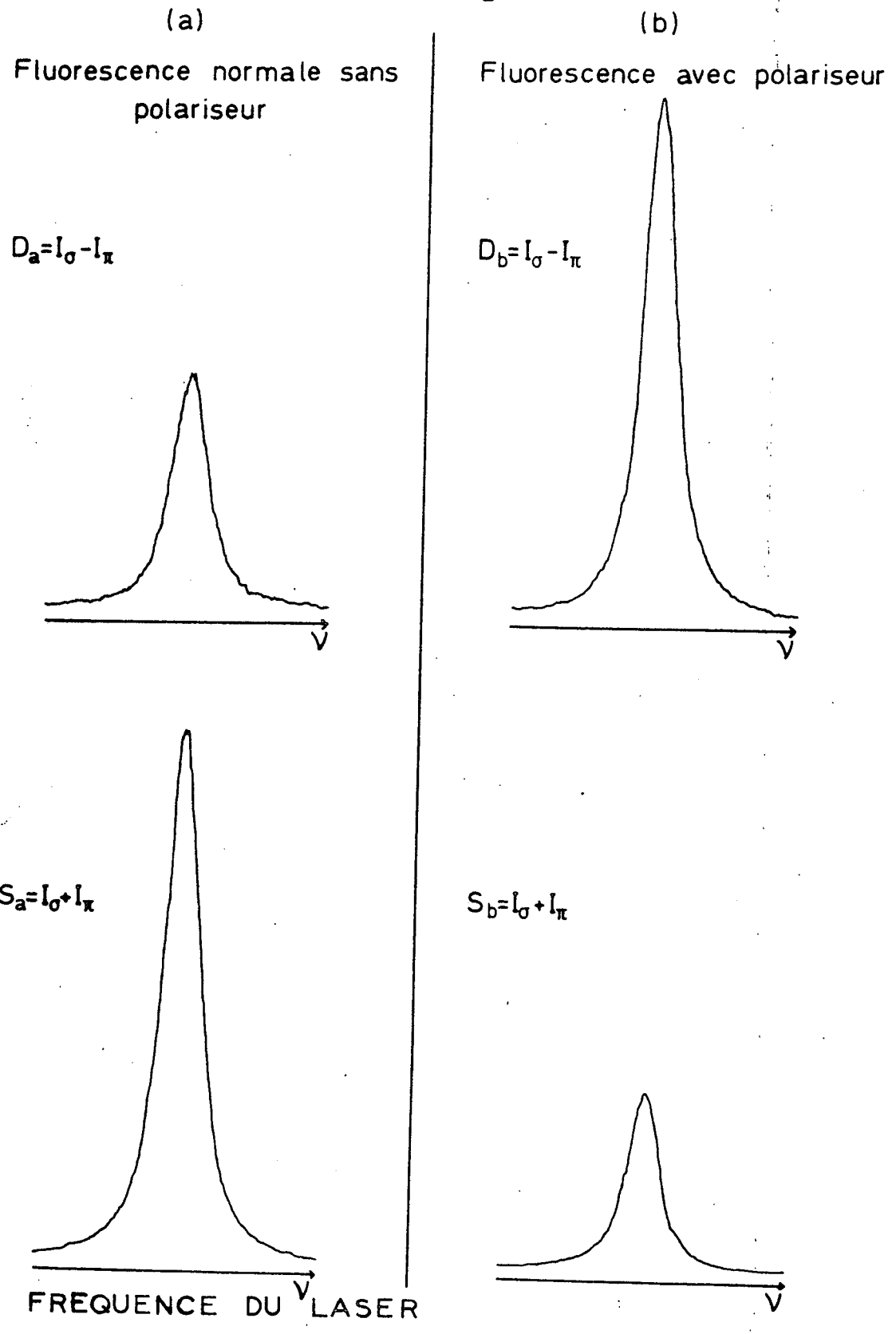


Figure V_9

rait y avoir une erreur systématique du fait que la fluorescence à partir de l'état 5S est à 6160 Å environ, alors que, pour le niveau 4D, la détection se fait vers 5685 Å : le taux de transmission de l'optique de détection pour chacune des polarisations σ et π peut en effet varier entre ces deux longueurs d'onde. Un ordre de grandeur de cet effet est donné par la variation de l'indice du verre entre 6160 Å et 5685 Å qui est de l'ordre de $2 \cdot 10^{-3}$. Compte tenu du fait qu'en absence de lame compensatrice le taux de polarisation dû à l'optique de détection est de 10 % environ, nous voyons que l'effet dû au changement de longueur d'onde est totalement négligeable (de l'ordre de $2 \cdot 10^{-4}$) par rapport à l'erreur initiale de 1 %.

b) Détection de la polarisation de la lumière de fluorescence

La lame demi-onde utilisée dans l'expérience précédente a été placée sur un support tournant à la fréquence ω (turbine à air comprimé). Le signal du photomultiplicateur est alors modulé à la fréquence 4ω pour une polarisation linéaire. Une détection synchrone permet de mesurer cette modulation. Nous envoyons simultanément sur l'enregistreur le signal de sortie de la détection synchrone proportionnel à $I_{\sigma} - I_{\pi}$ et le signal moyen du photomultiplicateur proportionnel à $I_{\sigma} + I_{\pi}$. Pour pouvoir comparer ces deux signaux quantitativement il suffit de polariser totalement la lumière de fluorescence. La précision du résultat dépend alors de la qualité des polariseurs et de la lame $\lambda/2$ utilisée. Nous avons vérifié que le taux d'extinction du système polariseur - lame $\lambda/2$ - polariseur était inférieur à $4 \cdot 10^{-3}$. Au total nous voyons que l'erreur absolue sur la mesure du taux de polarisation est de l'ordre de 0,014.

Nous donnons sur la figure V-9 un exemple d'enregistrement : il s'agit de l'excitation du niveau $4D_{5/2}$ en présence d'argon. Nous avons enregistré les signaux $I_{\sigma} - I_{\pi}$ et $I_{\sigma} + I_{\pi}$ en balayant le fréquence du laser lorsqu'on détecte la raie à 5688 Å. En effet dans cette expérience la longueur d'onde de détection reste fixe (5688 Å) et nous balayons la fréquence du laser de manière à ne tenir compte que de l'excitation à deux photons sans effet Doppler. Nous enregistrons d'abord la fluorescence normale (figure a), puis nous recommençons l'enregistrement en plaçant un polariseur sur le faisceau

de détection (figure b). Les intensités des courbes (a) correspondent à la mesure proprement dite du taux de polarisation, et celles des courbes (b) servent de référence. Lorsqu'on place le polariseur, le signal total $I_{\sigma} + I_{\pi}$ décroît à cause de l'absorption du polariseur, alors que le signal $I_{\sigma} - I_{\pi}$ croît, la lumière étant maintenant totalement polarisée. Le taux de polarisation T est donné par le rapport de ces quatre intensités :

$$T = \frac{D_a}{S_a} \times \frac{S_b}{D_b}$$

Pour la figure V-9 on obtient un taux de polarisation voisin de 0,15.

2°/ Taux de polarisation en absence de collisions

Lorsqu'il n'y a pas de collisions, les raies de fluorescence que nous observons doivent être fortement polarisées. Le calcul des intensités des raies a été reporté dans l'appendice C. Les taux de polarisation T en absence de structure hyperfine se calculent facilement à partir du tableau IV de cet appendice. On obtient :

| Niveau excité | $4D_{3/2}$ | $4D_{3/2}$ | $4D_{5/2}$ |
|---|------------|------------|------------|
| Longueur d'onde de fluorescence | 5682 Å | 5688 Å | 5688 Å |
| Taux de polarisation de la fluorescence | 1 | - 1/2 | 3/4 |

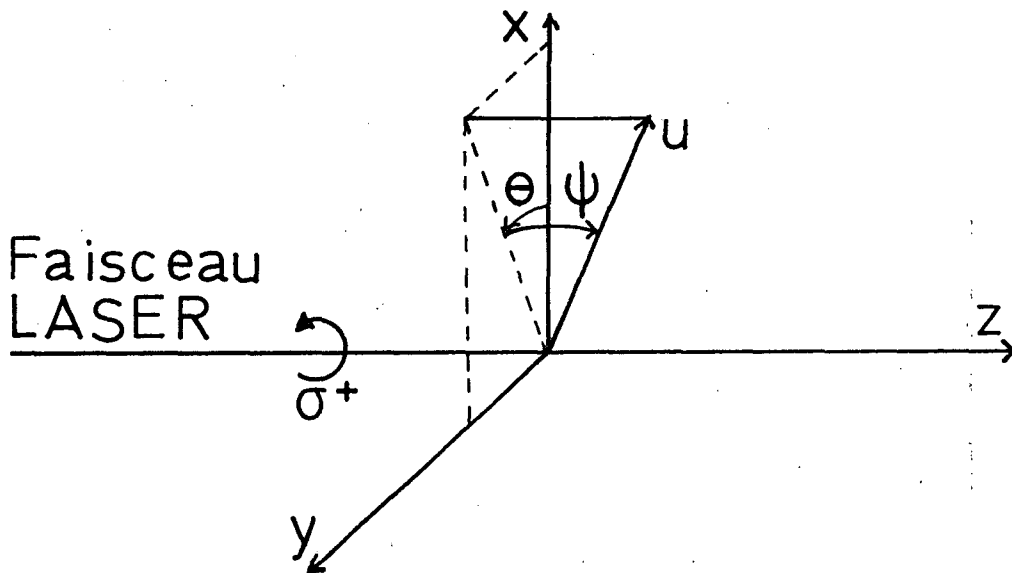
En fait ces valeurs théoriques sont perturbées par deux effets :

- D'une part ces résultats ne sont valables que pour la direction d'observation perpendiculaire au faisceau laser. Il faut faire une correction pour tenir compte de l'ouverture de l'angle solide de détection.
- D'autre part, même petite devant la largeur naturelle, la structure hyperfine du niveau 4D peut avoir un effet notable.

Nous allons examiner successivement ces deux points. Comme nous allons le montrer, ces deux effets n'ont pas de conséquences en ce qui concerne l'étude de la relaxation. Celle-ci sera reprise dans le paragraphe suivant (§ IV - 3°).

a) Effet de l'angle solide de détection

Pour tenir compte de cet effet, il faut calculer les intensités de fluorescence pour une direction arbitraire u définie par les angles polaires θ et ψ (figure V-10).



Pour cette direction de détection, l'intensité I_{σ} n'est pas modifiée, puisque, en excitation circulaire, l'axe Oz est un axe de révolution du système. Il n'en est pas de même pour l'intensité I_{π} , le vecteur polarisation faisant un angle ψ avec l'axe Oz . Le calcul est fait dans l'appendice C. Il est relativement simple dans la mesure où seul le coefficient φ_0^2 qui caractérise la matrice densité du rayonnement est modifié. Nous donnons simplement le résultat du calcul. Les deux équations (V-22) relatives aux intensités I_{π} deviennent :

$$I_{\pi} \text{ (5682)} \sim \frac{1}{9} \rho_0^{3/2} - \beta \frac{1}{9} \rho_0^2$$

$$I_{\pi} \text{ (5688)} \sim \frac{1}{45} \rho_0^{3/2} + \beta \frac{4}{225} \rho_0^2 + \frac{1}{5\sqrt{3}} \rho_0^{5/2} - \beta \frac{2}{25\sqrt{3}} \rho_0^2$$

A : Excitation de $4D_{\frac{3}{2}}$ $\lambda = 5682 \text{ \AA}$
 B : Excitation de $4D_{\frac{5}{2}}$ $\lambda = 5688 \text{ \AA}$
 C : Excitation de $4D_{\frac{3}{2}}$ $\lambda = 5688 \text{ \AA}$

---- Transition à partir de $3S_{\frac{1}{2}}, F=1$
 — Transition à partir de $3S_{\frac{1}{2}}, F=2$

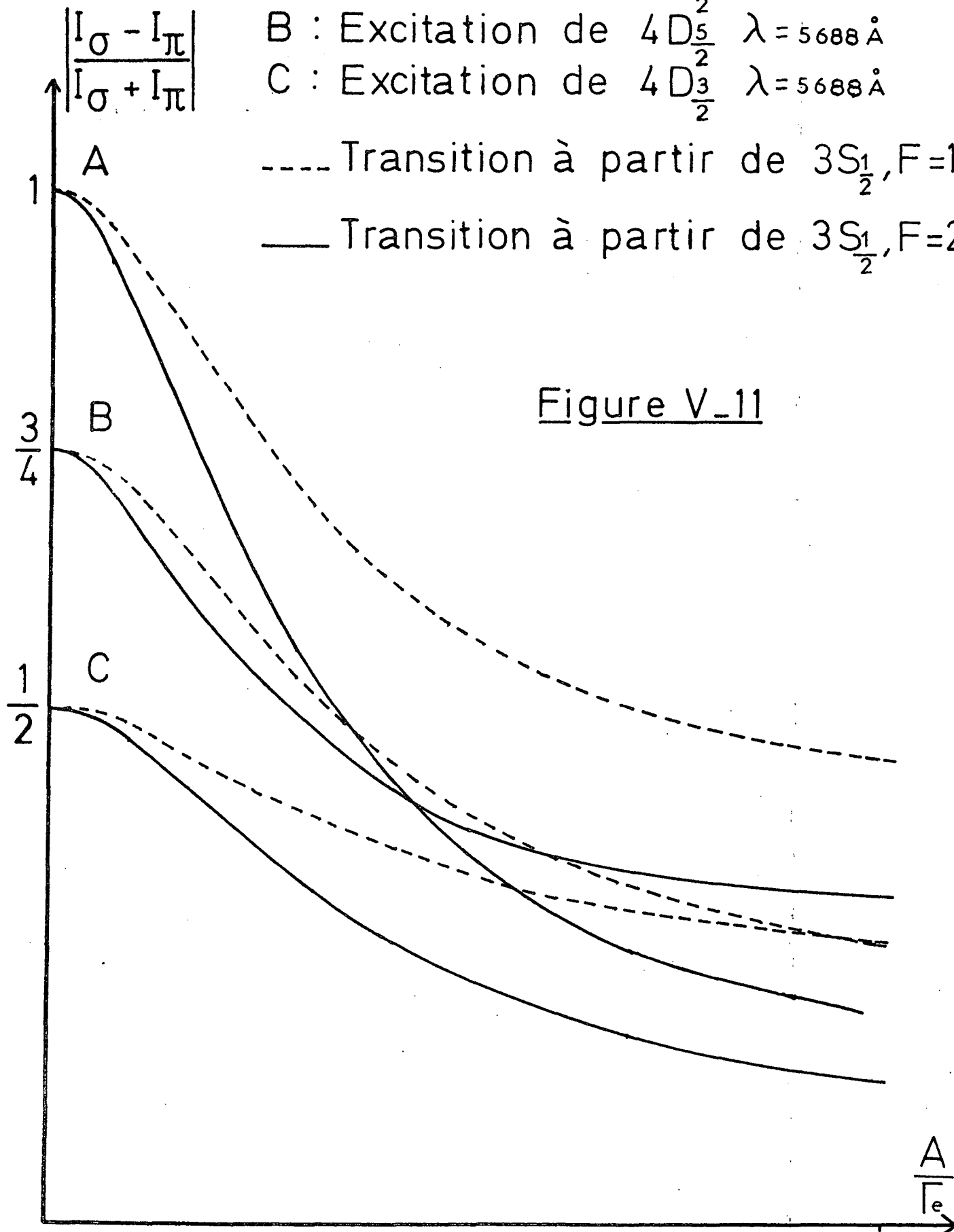


Figure V_11

Taux de polarisation de la lumière de fluorescence à la longueur d'onde de 1
 détection λ en fonction de la constante de structure hyperfine A de l'état excité $4D_J$
 (en absence de collisions).

Le coefficient β s'écrit :

$$\beta = \overline{\cos^2 \psi - \frac{1}{2} \sin^2 \psi} \quad (\text{V-64})$$

Le trait correspondant à la moyenne sur l'angle solide de détection. Dans notre montage l'angle solide de détection est limité par la fenêtre du four, l'angle ψ maximum étant de 0,25 radian. Il est alors facile de calculer le coefficient β qui vaut 0,97. (En toute rigueur, il faudrait tenir compte du fait que le taux de transmission du banc d'optique de détection peut varier selon l'inclinaison du rayon détecté par rapport à l'axe Oy. Cependant cet effet ne peut jouer qu'au niveau de la lentille de détection, le faisceau de détection étant beaucoup moins ouvert après cette lentille. En particulier cet effet est totalement négligeable au niveau de la lame demi-onde). En conclusion nous voyons que l'effet de l'angle solide n'est donc pas totalement négligeable et nous en avons tenu compte dans le dépouillement de toutes les mesures que nous avons faites.

b) Effet de la structure hyperfine du niveau 4D

Comme nous l'avons déjà signalé (chapitre II - § II - 2°) le niveau 4D possède une structure hyperfine petite devant la largeur naturelle. L'effet d'une telle structure est de diminuer le taux de polarisation de la lumière de fluorescence. En effet nous créons à l'excitation des cohérences entre niveaux hyperfins. Ces cohérences vont évoluer dans l'état excité, ce qui aura pour effet de réduire l'alignement. Ce genre d'étude a déjà été faite par J.C. Lehmann⁽⁶⁾ sur l'atome de cadmium, par F. Laloë⁽⁷⁾ sur l'atome d'hélium et par J.P. Descoubes⁽⁸⁾ dans le cas du niveau 5D du sodium.

Le calcul des taux de polarisation en tenant compte de la structure hyperfine est fait dans l'appendice C. L'ensemble des résultats est donné sur la figure V-11 qui représente la variation des taux de polarisation en fonction de A/Γ_e , où A est la constante de structure hyperfine de l'état $4D_{3/2}$ (courbes A et C) ou de l'état $4D_{5/2}$ (courbes B). Les courbes en pointillé correspondent aux transitions à partir du niveau fondamental $3S_{1/2}$,

$F_g = 1$, celles en trait plein aux transitions à partir du niveau $3S_{1/2}$, $F_g = 2$ (Pour les courbes C, nous avons porté $\frac{I_\pi - I_\sigma}{I_\pi + I_\sigma}$ au lieu de $\frac{I_\sigma - I_\pi}{I_\pi + I_\sigma}$ pour les courbes A et B). Nous voyons que les taux de polarisation varient très rapidement avec la structure hyperfine, cette variation étant plus forte pour les transitions à partir de l'état hyperfin $F_g = 2$ que pour les transitions à partir de l'état hyperfin $F_g = 1$.

Les résultats expérimentaux que nous avons obtenus sont rassemblés dans le tableau suivant et comparés avec les valeurs théoriques en l'absence de structure hyperfine. Les valeurs indiquées sont celles que l'on obtient après avoir fait la correction due à l'angle solide de détection.

| Niveau excité | $4D_{3/2}$ | $4D_{3/2}$ | $4D_{5/2}$ |
|---|-----------------|------------------|-----------------|
| Longueur d'onde | 5682 Å | 5688 Å | 5688 Å |
| Taux de polarisation sans structure hyperfine | 1 | $-\frac{1}{2}$ | $\frac{3}{4}$ |
| Niveau fondamental $3S_{1/2}$ $F_g = 2$ | $0,93 \pm 0,05$ | $-0,45 \pm 0,05$ | $0,74 \pm 0,05$ |
| Niveau fondamental $3S_{1/2}$ $F_g = 1$ | $0,97 \pm 0,05$ | $-0,48 \pm 0,05$ | $0,75 \pm 0,05$ |

La marge d'erreur tient compte à la fois des erreurs systématiques dont nous avons parlé, de l'incertitude liée à la correction de l'angle solide et de l'irreproductibilité des mesures. La qualité de la lame $\lambda/4$ qui sert à polariser le faisceau laser en σ^+ est telle que l'intensité du faisceau retour est divisée par 1000 après le passage dans le polariseur P_1 (figure V-4). Le calcul montre alors que l'erreur qui en résulte pour les taux de polarisation est de l'ordre de 10^{-3} . Par ailleurs nous avons vérifié que les collisions résiduelles étaient presque négligeables. Il suffit pour cela d'exciter le niveau $4D_{5/2}$ et de regarder le transfert vers le niveau $4D_{3/2}$ (fluorescence à 5682 Å). Le taux de transfert observé est de l'ordre de 0,5%. On en déduit que la diminution du taux de polarisation due à ces

collisions est inférieure à 1 %.

Notons d'abord que les valeurs expérimentales sont très voisines des valeurs théoriques sans structure hyperfine. Il semble d'autre part que les écarts à ces valeurs puissent s'interpréter par la structure hyperfine du niveau 4D, et ceci pour deux raisons :

- D'une part, nous trouvons bien que les raies de fluorescence qui correspondent à une excitation à deux photons à partir de l'état hyperfin fondamental $F_g = 1$ sont légèrement plus polarisées que celles correspondant à l'état $F_g = 2$. C'est ce qui est effectivement prévu par le calcul théorique dont le résultat a été reporté sur la figure V-11. (Les courbes en pointillés sont au-dessus des courbes en trait plein).
- L'écart à la valeur théorique est plus petit lorsqu'on excite l'état $4D_{5/2}$ plutôt que l'état $3D_{3/2}$. Or il est fort probable que la constante de structure hyperfine de l'état $4D_{5/2}$ soit plus petite que celle de l'état $4D_{3/2}$. Si on ne tient pas compte des effets de polarisation du coeur, on peut utiliser la formule bien connue valable pour un atome à un électron ⁽⁹⁾ :

$$A_J = - \frac{\Gamma_0}{4\pi} 2 \Gamma_B \gamma_n g_I \frac{l(l+1)}{J(J+1)} \frac{1}{\langle r^3 \rangle} \quad (V-56)$$

On a alors : $\frac{A_{5/2}}{A_{3/2}} \approx \frac{3}{7}$

Nous voyons donc que, qualitativement, les écarts aux valeurs théoriques s'expliquent bien par l'effet de la structure hyperfine. Nous pouvons alors donner un ordre de grandeur des constantes de structure hyperfine. Pour cela nous avons utilisé les mesures relatives aux fluorescences dont le taux de polarisation est le plus sensible à la structure hyperfine, à savoir les transitions $F_g = 2 \rightarrow 4D_{3/2}$, $\lambda = 5682 \text{ \AA}$ et $F_g = 2 \rightarrow 4D_{5/2}$, $\lambda = 5688 \text{ \AA}$. Nous obtenons :

$$|A_{3/2}| = 0,23 \pm 0,12 \text{ MHz}$$

$$|A_{5/2}| < 0,28 \text{ MHz}$$

Notre mesure de $A_{3/2}$ est en désaccord avec le résultat de P.K. Schenk et H.S. Pilloff⁽¹⁰⁾ qui trouvent :

$$|A_{3/2}| = 0,51 \pm 0,07 \text{ MHz}$$

Cette valeur de $A_{3/2}$ correspondrait pour la transition $F_g = 2 \rightarrow 4D_{3/2}$, $\lambda = 5682 \text{ \AA}$, à un taux de polarisation de 0,77 alors que nous trouvons expérimentalement $0,93 \pm 0,05$. Cette valeur est de beaucoup en dehors de notre marge d'erreur.

Précisons enfin que l'effet de dépolarisation dû à la structure hyperfine devient négligeable lorsqu'il y a des collisions. Dans ce cas il faut en gros remplacer la largeur naturelle Γ_e par le coefficient de relaxation de l'alignement $\Gamma_e + \frac{A_J}{J} \phi^2$. Le rapport $\frac{A_J}{\Gamma_e + \frac{A_J}{J} \phi^2}$ tend alors vers zéro lorsque la pression de gaz étranger augmente. Pour les pressions que nous avons utilisées (de 0,1 à 2 Torr) l'effet de la structure hyperfine est négligeable.

3°/ Etude de la relaxation de l'alignement

Comme nous l'avons expliqué dans la deuxième partie de ce chapitre, la mesure des taux de polarisation de la lumière de fluorescence permet de connaître les coefficients de relaxation de l'alignement à l'intérieur des niveaux 4D. Il faut faire pour cela trois expériences distinctes :

- Le coefficient de relaxation de l'alignement $\frac{3/2}{3/2} \phi^2$ à l'intérieur du niveau $4D_{3/2}$ s'obtient en excitant ce niveau et en étudiant le taux de polarisation de la lumière de fluorescence à 5682 Å. (cf. § II - 5° a).
- Le coefficient de relaxation de l'alignement $\frac{5/2}{5/2} \phi^2$ à l'intérieur du niveau $4D_{5/2}$ s'obtient de même en excitant ce niveau et en étudiant le taux de polarisation de la lumière de fluorescence à 5688 Å. (cf. § II - 5° a).
- Enfin le coefficient de transfert d'alignement se mesure en excitant le

niveau $4D_{5/2}$ et en regardant le taux de polarisation de la lumière de fluorescence à 5682 Å. (cf. § II - 6°).

Nous présentons d'abord les résultats des deux premières expériences. Dans ces deux expériences nous observons une décroissance du taux de polarisation de la lumière de fluorescence lorsque la pression de gaz étranger augmente et nous en déduisons les constantes de relaxation de l'alignement à l'intérieur des niveaux $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$.

a) Mesure des coefficients de relaxation de l'alignement $\frac{3/2}{3/2} \phi^2$ et $\frac{5/2}{5/2} \phi^2$

Nous avons fait les mesures de taux de polarisation en fonction de la pression pour les cinq gaz rares (He, Ne, Ar, Kr, Xe). Pour dépouiller les résultats nous utilisons la méthode exposée au paragraphe (II - 5°) :

- Expérimentalement nous mesurons le taux de polarisation T :

$$T = \frac{I_{\sigma} - I_{\pi}}{I_{\sigma} + I_{\pi}}$$

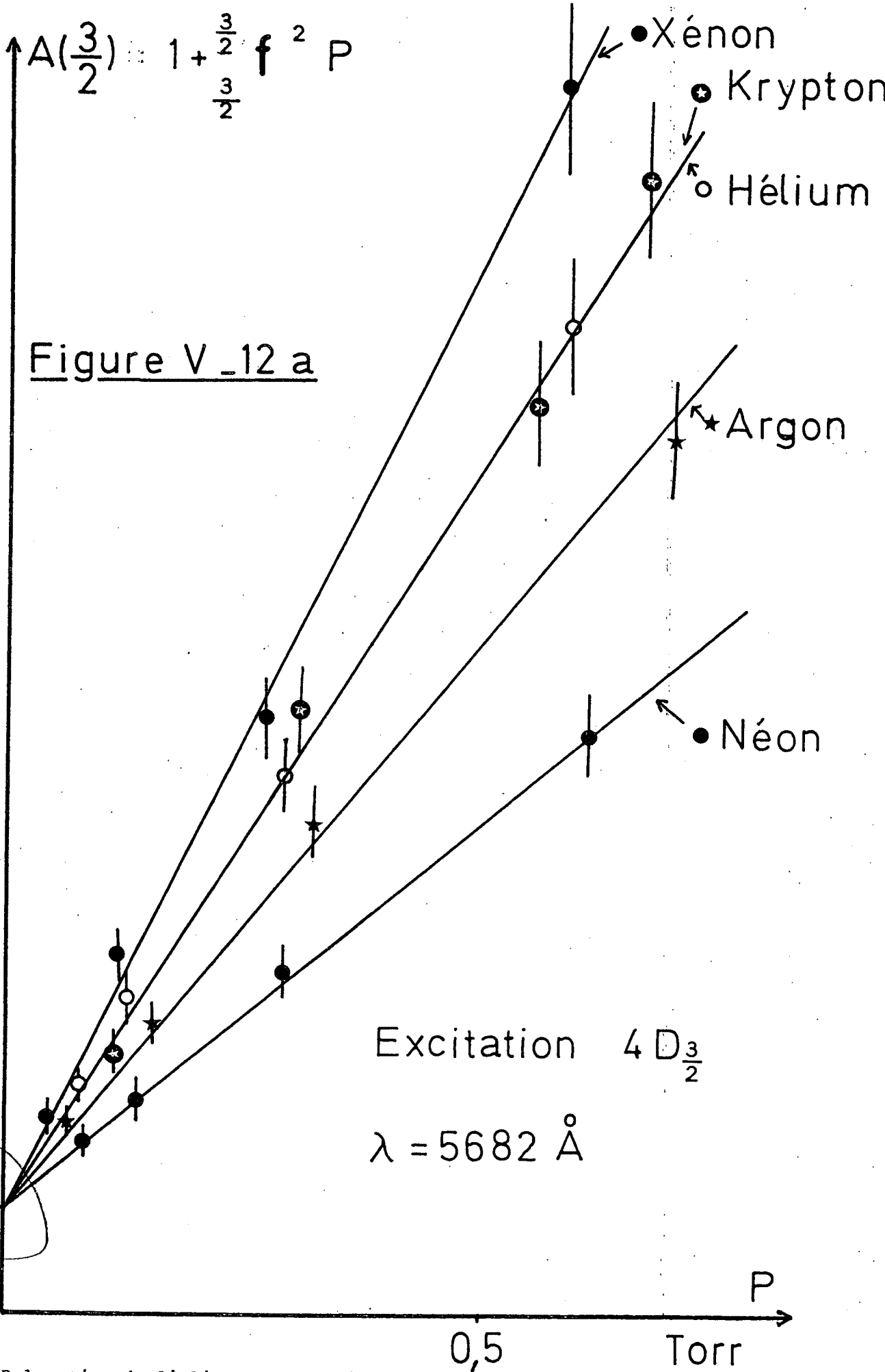
- Nous en déduisons (équation V-35) la quantité U :

$$U = \frac{I_{\sigma} - I_{\pi}}{2I_{\sigma} + I_{\pi}}$$

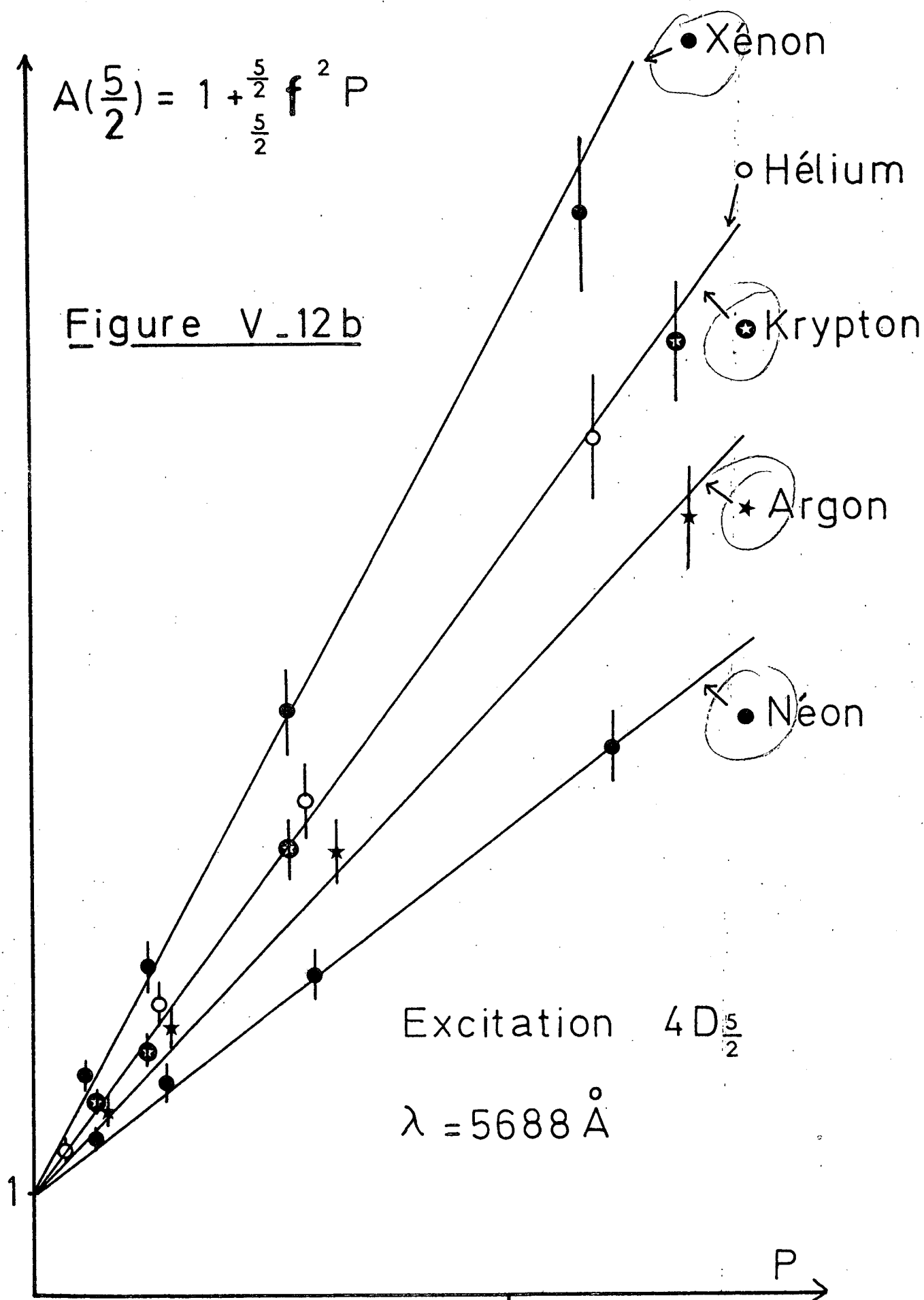
Rappelons que le numérateur de cette quantité ne dépend que de l'alignement et le dénominateur ne dépend que de la population du niveau excité.

- A partir de là nous supposons connus par les mesures précédentes les coefficients de relaxation de la population G^0 et G^1 . En formant la quantité sans dimension $A(J)$ définie par les relations (V-41) et (V-51) nous éliminons de U les variations dues à la relaxation de la population. Les quantités $A(J)$ ne dépendent plus que des coefficients de relaxation de l'alignement et varient de manière linéaire avec la pression (équations V-44 et V-53) :

$$A(3/2) = 1 + \frac{\frac{3/2}{3/2} \phi^2}{\Gamma_e} = 1 + \frac{3/2}{3/2} f^2 p$$



Relaxation de l'alignement du niveau $4D_{\frac{3}{2}}$
 (coefficient A défini par la formule V-41).

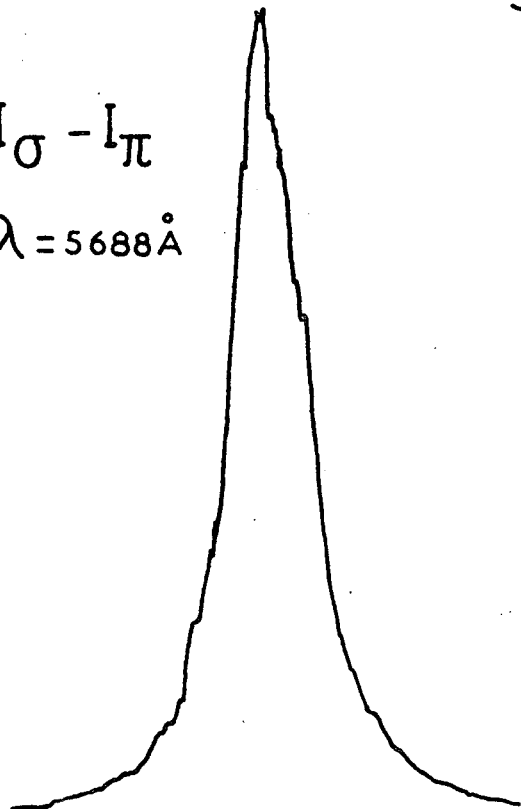


Relaxation de l'alignement du niveau $4D_{5/2}$
(coefficient $A(5/2)$ défini par la formule V-51).

Pression d'argon = 0,14 Torr

$I_{\sigma} - I_{\pi}$

$\lambda = 5688 \text{ \AA}$



Excitation du niveau

$4 D_{\frac{5}{2}}$

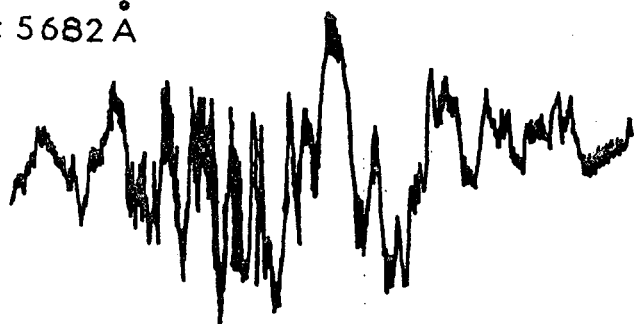
Transfert d'alignement

Figure V_13

$I_{\sigma} - I_{\pi}$

x 60

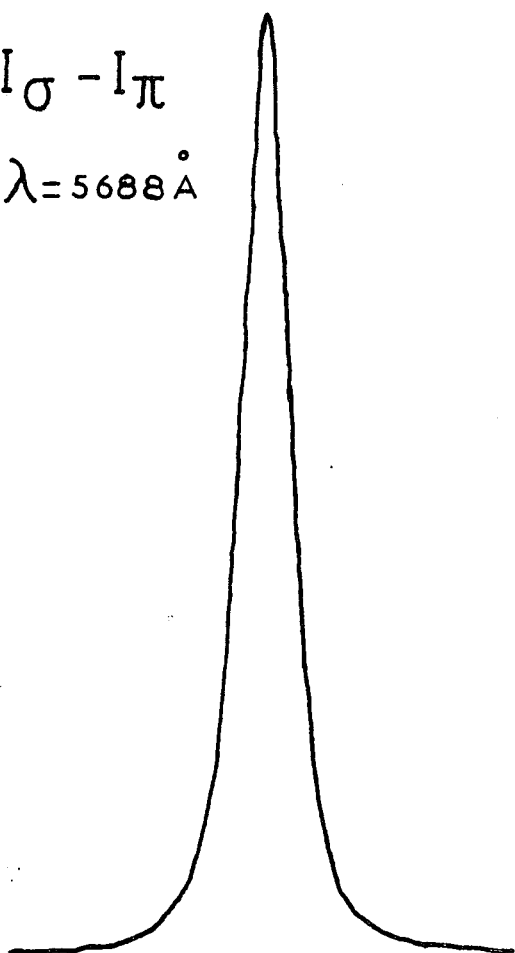
$\lambda = 5682 \text{ \AA}$



Pression de néon = 0,14 Torr

$I_{\sigma} - I_{\pi}$

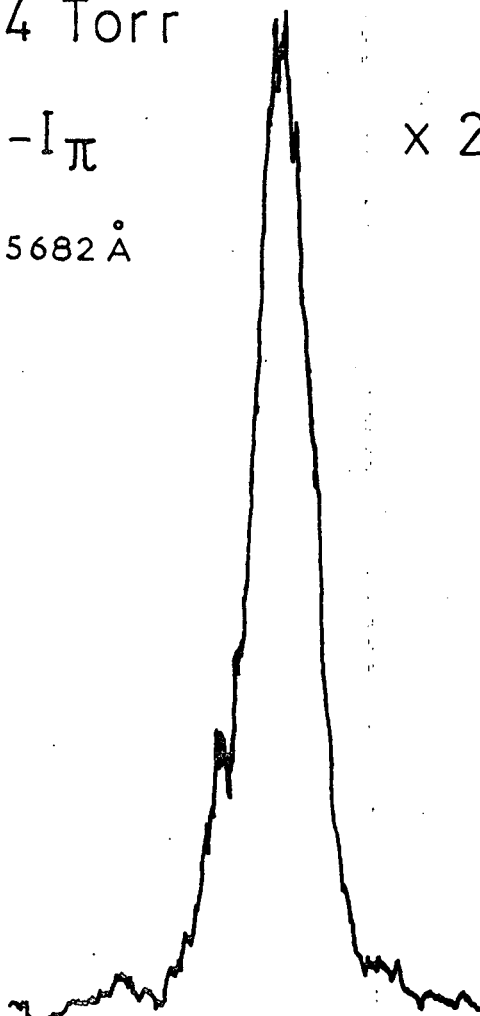
$\lambda = 5688 \text{ \AA}$



$I_{\sigma} - I_{\pi}$

x 25

$\lambda = 5682 \text{ \AA}$



$$A(5/2) = 1 + \frac{5/2 \Phi^2}{\Gamma_e} = 1 + \frac{5/2 f^2}{5/2} p$$

Nos résultats expérimentaux ont été reportés sur les figures V-12, qui représentent les variations de $A(3/2)$ et $A(5/2)$ en fonction de la pression. Nous voyons que les points expérimentaux s'alignent approximativement sur des droites concourantes à pression nulle. Les coefficients $J f^2$ s'obtiennent en mesurant la pente de ces droites. Les résultats sont rassemblés dans le tableau ci-dessous (l'unité est le torr⁻¹ mesuré à 300°K).

| | He | Ne | Ar | Kr | Xe |
|-----------------------|------------|-----------|------------|------------|------------|
| $\frac{3/2}{3/2} f^2$ | 14,7 ± 2,0 | 7,4 ± 0,7 | 9,8 ± 1,3 | 14,5 ± 1,8 | 18,5 ± 1,4 |
| $\frac{5/2}{5/2} f^2$ | 12,7 ± 1,8 | 7,1 ± 0,7 | 10,9 ± 1,4 | 12,3 ± 1,4 | 17,2 ± 2,3 |

Les erreurs que nous indiquons sont de l'ordre de 10 % à 15 %. Nous tenons compte dans ces marges d'erreurs de l'imprécision du calcul des quantités $A(J)$ liée aux erreurs sur les coefficients G^0 et G^1 .

D'un gaz rare à l'autre, les variations sont analogues à celles obtenues pour le coefficient g^1 : la relaxation diminue lorsqu'on passe de l'hélium au néon, pour croître ensuite du néon au xénon. D'autre part la relaxation est généralement plus forte à l'intérieur du niveau $4D_{3/2}$ qu'à l'intérieur du niveau $4D_{5/2}$ (sauf pour l'argon).

b) Transfert d'alignement entre les niveaux $4D_{5/2}$ et $4D_{3/2}$

Pour mesurer le transfert d'alignement nous excitons le niveau $4D_{5/2}$ et nous regardons la fluorescence vers le niveau $3P_{1/2}$ à 5682 Å : en effet, la transition $4D_{5/2} \rightarrow 3P_{1/2}$ est interdite et cette fluorescence ne peut venir que du niveau $4D_{3/2}$. En mesurant son taux de polarisation on en déduit l'alignement transféré du niveau $4D_{5/2}$ vers le niveau $4D_{3/2}$. Nous déduisons le coefficient de transfert d'alignement en comparant les différences d'intensités $D(5682) = I_{\sigma}(5682) - I_{\pi}(5682)$ et $D(5688) = I_{\sigma}(5688) - I_{\pi}(5688)$. La figure V-13 montre un exemple d'enregistrement dans le cas de

l'argon et dans celui du néon. Sur cette figure l'enregistrement de D (5682) a été fait avec une sensibilité 60 fois plus grande dans le cas de l'argon et 25 fois plus grande dans le cas du néon. Nous observons qu'il n'y a pas de transfert d'alignement apparent avec l'argon, alors que ce transfert est très net pour le néon.

Les résultats que nous avons obtenus sont rassemblés dans le tableau suivant (l'unité est le torr⁻¹ mesuré à 300°K) :

| | He | Ne | Ar | Kr | Xe |
|------------------------------------|-------------------|-------------------|--------------|--------------|--------------|
| $\frac{3}{2} f^2$ $\frac{5}{2}$ | $- 0,93 \pm 0,13$ | $- 0,55 \pm 0,07$ | $0 \pm 0,18$ | $0 \pm 0,18$ | $0 \pm 0,18$ |

Nous n'avons pas observé de transfert d'alignement pour les gaz rares lourds (Ar, Kr, Xe). Dans le cas de l'hélium et du néon, nous avons pu mesurer un faible transfert d'alignement. Le signe moins indique que l'alignement transféré dans l'état $4D_{3/2}$ est de même signe que celui créé dans l'état $4D_{5/2}$ (cf. équation V-3). Nous notons enfin que les coefficients de transfert d'alignement $\frac{3}{2} f^2$ et $\frac{5}{2}$ sont petits par rapport aux coefficients de relaxation de l'alignement $\frac{3}{2} f^2$ et $\frac{5}{2} f^2$: cela justifie l'hypothèse V-43 qui nous a permis de simplifier les coefficients A(J) (cf. § II - 5°).

Finalement nous voyons que les mesures de taux de polarisation nous ont permis d'obtenir les trois coefficients de relaxation de l'alignement. Il nous reste maintenant à interpréter ces coefficients en fonction des coefficients de relaxation G^k indépendants de la structure fine. Cependant nous décrivons d'abord les expériences d'effet Hanle que nous avons faites pour contrôler ces mesures de relaxation à partir des taux de polarisation.

V - ETUDE DE LA RELAXATION DE L'ALIGNEMENT PAR EFFET HANLE

L'étude de l'élargissement des courbes d'effet Hanle avec la pression de gaz étranger permet aussi de mesurer la relaxation de l'alignement. Nous avons utilisé cette technique pour vérifier dans un cas particulier la validité des résultats obtenus précédemment. Nous décrivons d'abord le montage expérimental.

1°/ Description du montage expérimental

Le principe de l'effet Hanle est le suivant. L'atome est placé dans un champ magnétique qui fait précesser les grandeurs transversales que l'on crée dans l'état excité. Cela se traduit par une diminution du taux de polarisation de la lumière de fluorescence émise dans la direction du champ magnétique, cette lumière de fluorescence étant totalement dépolarisée en champ magnétique fort. Une expérience d'effet Hanle consiste donc à mesurer une variation de taux de polarisation en fonction du champ magnétique.

Le montage expérimental utilisé pour l'effet Hanle est sensiblement le même que celui utilisé pour les mesures de taux de polarisation. Il en diffère cependant en plusieurs points :

- La cellule d'expérience est placée dans un champ magnétique parallèle à la direction de détection (perpendiculaire au faisceau laser).
- La fréquence du laser est asservie sur le signal à deux photons de manière à rester au maximum du signal (comme pour les transferts de population § III - 1°). La boucle d'asservissement est celle décrite au paragraphe III - 1° - b, si ce n'est que nous utilisons le signal délivré par le photomultiplicateur PM1 (figure V-4) et non celui délivré par le photomultiplicateur PM2 (pour la mesure des taux de polarisation, le photomultiplicateur PM2 est supprimé).
- Le signal *moyen* du photomultiplicateur PM1 est asservi à être constant. Cette technique a déjà été utilisée au laboratoire par R. Romestain (11).

Effet HANLE a resion nulle

Excitation du veau $4D_{5/2}$

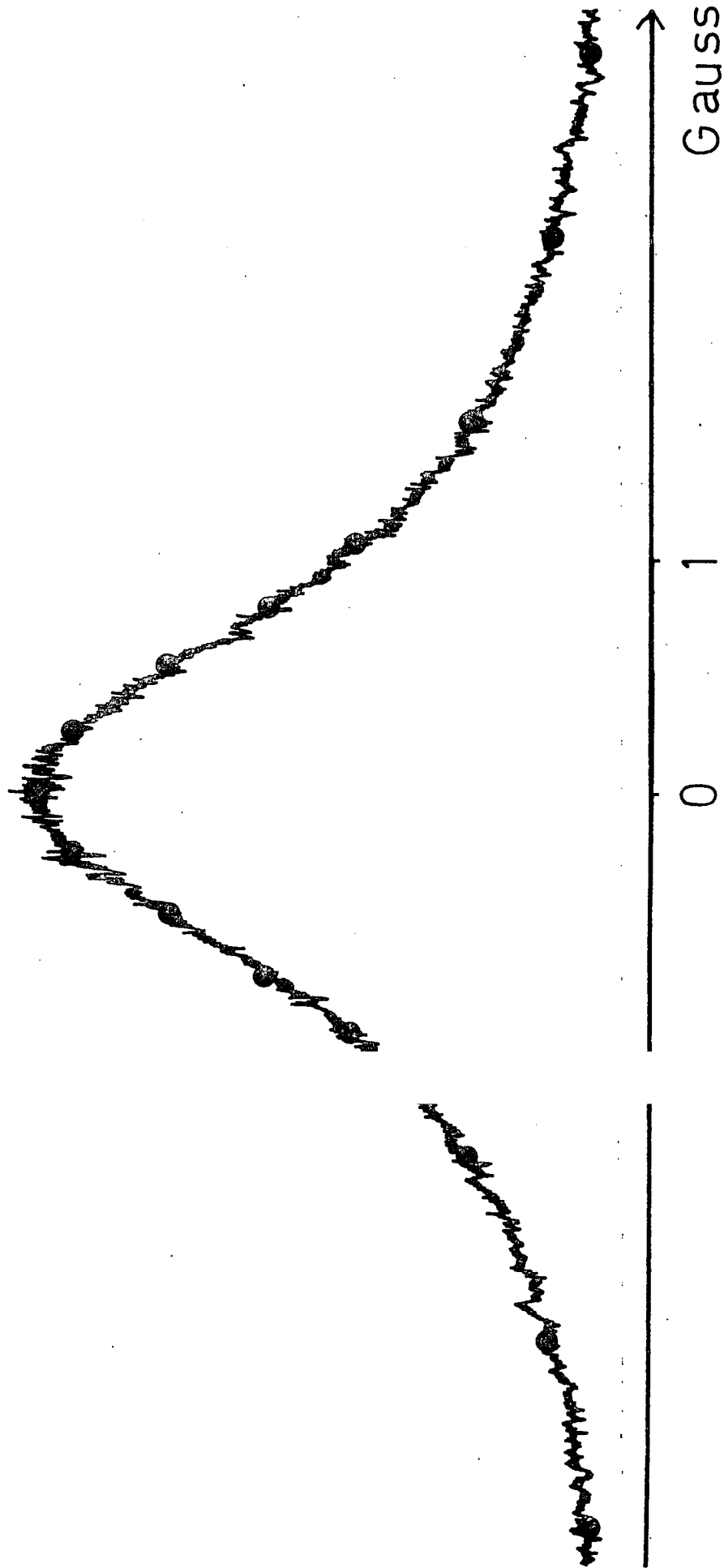


Figure V_14

Le signal délivré par la détection synchrone, proportionnel à $I_{\sigma} - I_{\pi}$, est alors aussi proportionnel au taux de polarisation $\frac{I_{\sigma} - I_{\pi}}{I_{\sigma} + I_{\pi}}$, $I_{\sigma} + I_{\pi}$ restant constant au cours du balayage du champ magnétique. Pour ce faire, nous comparons le signal du photomultiplicateur à une tension de référence et nous utilisons ce signal d'erreur pour corriger la tension d'alimentation du photomultiplicateur. La bande passante de cet asservissement doit être faible (de l'ordre de 1 s) de façon qu'il ne soit pas perturbé par les deux modulations détectées sur le signal du photomultiplicateur : modulation vers 400 Hz due à la rotation de la lame $\lambda/2$ et modulation vers 10 kHz due à la modulation de la fréquence du laser nécessaire pour l'asservissement sur le centre du signal à deux photons. Cet asservissement du signal moyen du photomultiplicateur permet aussi de corriger toutes les variations lentes de l'intensité du signal à deux photons.

2° / Résultats obtenus par effet Hanle

Nous avons étudié l'élargissement de l'effet Hanle en présence de krypton lorsqu'on excite le niveau $4D_{5/2}$. La figure V-14 donne un exemple d'enregistrement à pression nulle. Normalement les courbes d'effet Hanle sont lorentziennes sous les hypothèses suivantes :

- La structure hyperfine doit être négligeable.
- Le transfert d'alignement entre les deux niveaux de structure fine doit être petit par rapport à la relaxation de l'alignement. Comme nous l'avons vu c'est bien le cas pour le krypton.
- Le champ magnétique doit être assez faible pour ne pas mélanger les niveaux $4D_{5/2}$ et $4D_{3/2}$.

Les points représentés sur la figure V-14 correspondent à une courbe lorentzienne. Nous voyons que la courbe expérimentale est lorentzienne avec une bonne approximation.

La demi-largeur H de cette lorentzienne est directement reliée au coefficient de relaxation de l'alignement dans le niveau $4D_J$ ⁽¹²⁾ :

$$2 g_J \mu_B H = \Gamma_e + \frac{J}{J} \phi^2 \quad (V-57)$$

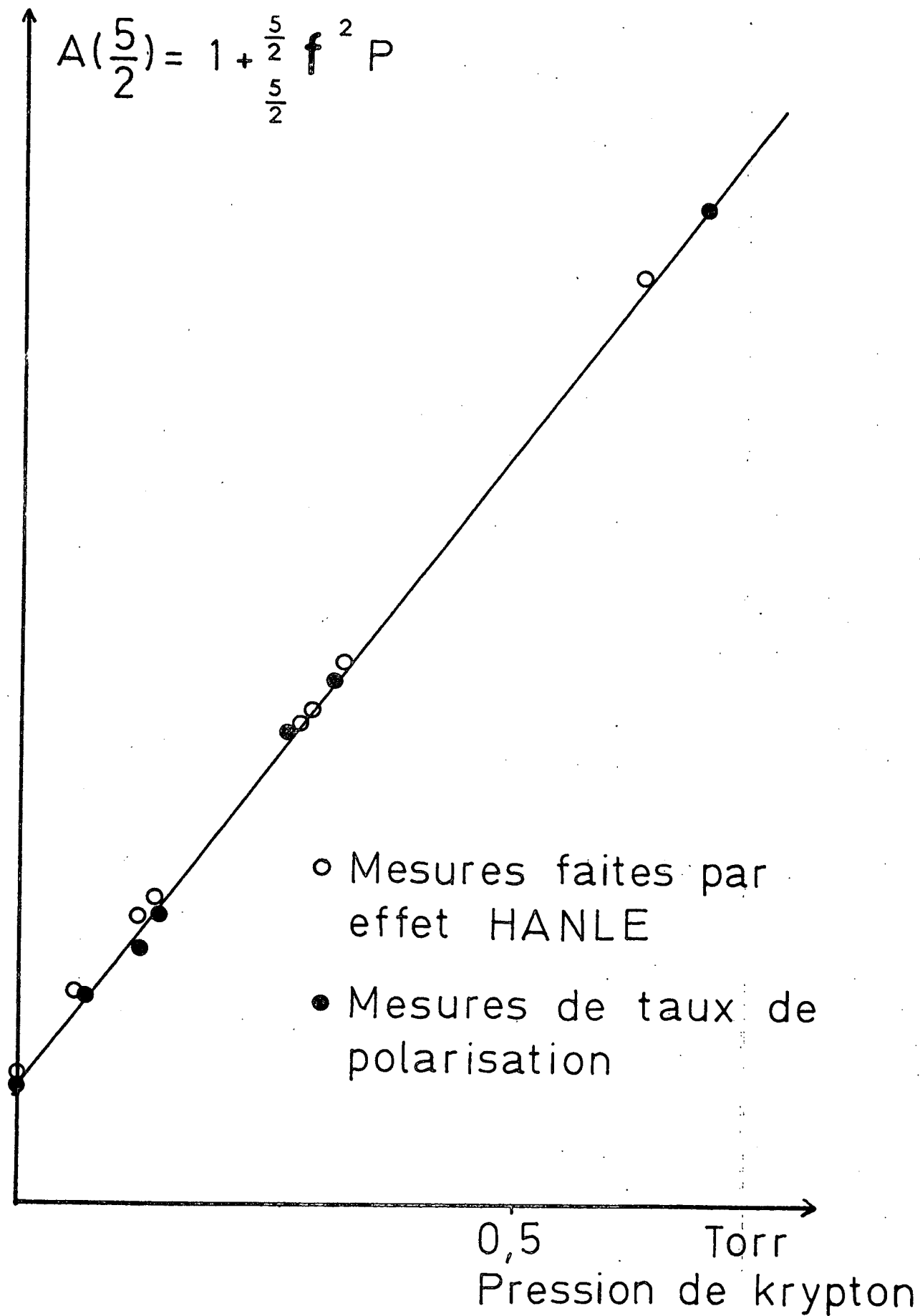


Figure V_15

Nous pouvons en déduire facilement une nouvelle mesure de la quantité $A(J)$:

$$A(J) = \frac{2 g_J \mu_B H}{\Gamma_e} = 1 + \frac{J}{J} f^2 p \quad (V-58)$$

La figure V-15 permet de comparer les mesures de $A(5/2)$ faites par effet Hanle à celles obtenues à partir des taux de polarisation. Nous obtenons un accord satisfaisant. Cependant les valeurs obtenues à faibles pression sont plus grandes. En particulier à pression nulle la largeur de l'effet Hanle est d'environ 10 % plus grande que la valeur calculée à partir de la durée de vie. Nous avons vu précédemment (§ IV - 2° - b) que l'effet des collisions résiduelles est au plus de 1 %. Par ailleurs nous avons vérifié que cet élargissement de l'effet Hanle n'était pas dû à la largeur des fentes du monochromateur. Il est donc probable que cet effet est dû à la structure hyperfine du niveau $4D$. Ceci semble d'autant plus justifié que la largeur de l'effet Hanle, à pression nulle, est trop grande de 10 % pour le niveau $4D_{5/2}$ et de 18 % pour le niveau $4D_{3/2}$. Or nous avons vu précédemment que la structure hyperfine de l'état $4D_{3/2}$ est plus grande que celle de l'état $4D_{5/2}$.

Cependant, dans cette expérience, le coefficient de relaxation $\frac{5/2}{5/2} f^2$ auquel nous nous intéressons est donné par la pente de la droite représentée sur la figure V-15. Nous voyons donc que, malgré le désaccord à faible pression, les mesures d'effet Hanle et de taux de polarisation donnent des résultats qui diffèrent d'au plus 3 % en ce qui concerne les pentes. Ceci confirme donc les mesures de relaxation déduites des mesures de taux de polarisation que nous avons faites précédemment (§ IV - 3°).

VI - CALCULS DES COEFFICIENTS DE RELAXATION G^k INDEPENDANTS DE LA STRUCTURE FINE

Lorsque la structure fine est petite devant l'inverse du temps de collision τ_c , les coefficients de relaxation J, Φ^k en présence de structure fine s'expriment simplement en fonction des coefficients G^k indépendants de la structure fine. Les relations entre ces coefficients ont été établies dans la première partie de ce chapitre (Tableau I). Nous allons donc pouvoir déduire

à partir des mesures des coefficients J_J, ϕ^k la valeur des coefficients G^k .

Rappelons d'abord l'ensemble des résultats obtenus. Nous avons fait trois types de mesures :

- Mesure du transfert de population vers le niveau 4F. On en déduit le coefficient G^0 .
- Mesure du transfert de population entre les niveaux de structure fine $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$. Ce transfert dépend des coefficients G^0 et G^1 . Connaissant G^0 on en déduit le coefficient G^1 .
- Mesure des coefficients de relaxation de l'alignement $\frac{3}{2} \phi^2$, $\frac{5}{2} \phi^2$ et $\frac{3}{2} \phi^2$. Ces coefficients s'expriment en fonction des coefficients G^1 , G^2 et G^3 :

$$\frac{3}{2} \phi^2 = \frac{1}{125} (6G^1 + 35G^2 + 84G^3)$$

$$\frac{5}{2} \phi^2 = \frac{1}{125} (56G^1 + 60G^2 + 9G^3)$$

$$\frac{3}{2} \phi^2 = \frac{\sqrt{21}}{125} (-4G^1 + 10G^2 - 6G^3) = \frac{\sqrt{21}}{125} [4(G^2 - G^1) + 6(G^2 - G^3)]$$

Le coefficient de transfert d'alignement $\frac{3}{2} \phi^2$ ne dépend que des différences entre les coefficients G^k : si ces coefficients sont du même ordre de grandeur le transfert d'alignement est très faible. Ceci correspond bien aux résultats expérimentaux que nous avons obtenus.

Nous voyons donc que, mise à part la mesure du coefficient G^0 , nous avons mesuré quatre quantités qui dépendent des trois coefficients G^1 , G^2 et G^3 . Les valeurs que nous en avons déduites sont rassemblées dans le tableau suivant. Nous y avons indiqué les valeurs des coefficients de relaxation réduit g^k :

$$G^k = g^k \Gamma_e p$$

l'unité est le torr⁻¹ mesuré à 300°K. Nous avons noté par ailleurs la quantité

$\frac{\Delta g^1}{g^1}$, où Δg^1 est l'écart entre la mesure de g^1 faite par transfert de population et celle obtenue à partir des trois coefficients de relaxation de l'alignement. Nous voyons que la concordance entre les deux résultats est de l'ordre de la précision des mesures.

| | He | Ne | Ar | Kr | Xe |
|--------------------------|----------------|---------------|-----------------|-----------------|-----------------|
| g^0 | $4,1 \pm 1,1$ | $1,0 \pm 0,3$ | $0,56 \pm 0,16$ | $0,71 \pm 0,16$ | $0,63 \pm 0,16$ |
| g^1 | $15,2 \pm 2,2$ | $8,0 \pm 1,3$ | $8,7 \pm 1,1$ | $11,8 \pm 0,9$ | $17,5 \pm 3,0$ |
| g^2 | $11,8 \pm 2,0$ | $6,3 \pm 0,9$ | $10,3 \pm 1,6$ | $13,2 \pm 2,0$ | $17,8 \pm 1,8$ |
| g^3 | $15,4 \pm 2,9$ | $7,8 \pm 1,1$ | $11,2 \pm 2,0$ | $14,8 \pm 2,5$ | $18,6 \pm 2,3$ |
| $\frac{\Delta g^1}{g^1}$ | 17 % | 6 % | 3 % | 11 % | 9 % |

Coefficients de relaxation réduits $g^k = \frac{G^k}{\Gamma_e p}$ en torr⁻¹

Tableau III

Les marges d'erreurs indiquées sont relativement importantes.

Cependant *ces erreurs ne sont pas indépendantes*. En particulier l'ordre relatif des trois coefficients g^1 , g^2 et g^3 est significatif. Cet ordre est en fait imposé par la mesure de transfert d'alignement. Pour les gaz rares lourds (Ar, Kr, Xe) nous n'avons pas observé de transfert d'alignement et la valeur de g^2 est intermédiaire :

$$g^1 < g^2 < g^3$$

Par contre, pour l'hélium et le néon, le transfert d'alignement est notable et nous avons :

$$g^2 < g^1, g^3$$

L'effet de l'hélium et du néon est donc nettement différent de celui des trois gaz lourds.

A partir des valeurs des coefficients g^k nous pouvons calculer les sections efficaces de relaxation σ_k correspondantes. Celles-ci sont définies par :

$$n \sigma_k \bar{V} = G^k \quad (\text{V-59})$$

n étant le nombre de perturbateurs par unité de volume et \bar{V} la vitesse relative moyenne :

$$\bar{V} = \sqrt{\frac{8}{\pi} \frac{kT}{\mu}} \quad \mu \text{ étant la masse réduite.}$$

Nos mesures étant faites par rapport à la probabilité d'émission spontanée Γ_e , nous avons utilisé les mesures de durée de vie faites par D. Kaiser⁽¹³⁾ et F. Karstensen et J. Schramm⁽¹⁴⁾ :

$$\frac{1}{\Gamma_e} = \tau = 52 \pm 3 \text{ ns}$$

Les valeurs obtenues sont rassemblées dans le tableau suivant (l'unité est $100 a_0^2$, où a_0 est le rayon de la première orbite de Bohr : $a_0 \approx 0,53 \text{ \AA}$).

| | He | Ne | Ar | Kr | Xe |
|------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|
| σ_0 | $4,7 \pm 1,3$ | $2,2 \pm 0,5$ | $1,3 \pm 0,4$ | $1,9 \pm 0,4$ | $1,8 \pm 0,5$ |
| σ_1 | $17,6 \pm 2,5$ | $16,4 \pm 2,6$ | $20,8 \pm 2,6$ | $31,4 \pm 2,4$ | $48,6 \pm 8,5$ |
| σ_2 | $13,6 \pm 0,9$ | $13,0 \pm 1,9$ | $24,7 \pm 3,9$ | $35,2 \pm 5,3$ | $49,3 \pm 5,0$ |
| σ_3 | $17,8 \pm 3,3$ | $16,0 \pm 2,2$ | $26,9 \pm 4,8$ | $39,6 \pm 6,8$ | $51,8 \pm 6,5$ |

Sections efficaces de relaxation $\sigma_k = \frac{G^k}{n\bar{V}}$ exprimées avec l'unité $100a_0^2$

Tableau IV

Ces résultats sont en quelque sorte la conclusion de ce chapitre et ce sont ces sections efficaces, définies en absence de structure fine, que nous

essayons d'interpréter dans le chapitre suivant. De l'ensemble de ces résultats, il ressort deux points particuliers qu'il est intéressant de noter :

- ★ Les mesures de transfert d'alignement permettent de distinguer les gaz rares légers (Hélium et Néon) pour lesquels nous observons du transfert, des gaz rares lourds (Argon, Krypton, Xénon) pour lesquels nous n'avons pas observé de transfert d'alignement.
- ★ Les sections efficaces σ_k ($k = 1, 2, 3$) sont souvent légèrement plus grandes que la section efficace d'élargissement σ_b que nous avons mesurée au chapitre précédent. Cela est particulièrement net dans le cas de l'hélium, du néon et du xénon. Ce résultat est intéressant dans la mesure où, dans des expériences analogues, on trouve un rapport $\frac{\sigma_k}{\sigma_b}$ beaucoup plus petit. Par exemple, dans le cas du mercure (niveau 6^3P_1), on déduit à partir des sections efficaces de relaxation mesurées par Faroux ⁽¹⁵⁾ et des sections efficaces d'élargissement mesurées par Buteaux ⁽¹⁶⁾ que l'on a :

$$\frac{\sigma_1}{\sigma_b} \sim 0,5$$

*↑
typique*

Nous verrons au chapitre VI que cela indique une forte anisotropie du potentiel d'interaction.

*↑
dans quel cas ?*

C H A P I T R E V I

INTERPRETATION THEORIQUEET CALCUL DES SECTIONS EFFICACES

Le but de ce chapitre est d'interpréter théoriquement les différentes sections efficaces mesurées expérimentalement. Nous nous intéresserons d'abord à l'aspect qualitatif du problème. En particulier nous allons étudier l'influence des différents types de potentiel sur le déplacement des transitions à deux photons et sur l'ordre de grandeur relatif des diverses sections efficaces de relaxation σ_k . Notre second centre d'intérêt sera ensuite de tester quantitativement les divers types de potentiel d'interaction sodium-gaz rare, dont en particulier les potentiels calculés par Pascale et Vandepianque ⁽¹⁾.

Ce chapitre se subdivise en trois parties. Nous présentons d'abord les hypothèses générales et le principe du calcul des sections efficaces. Les calculs que nous faisons étant tout à fait classiques, nous ne dirons que

l'essentiel et, pour plus de détails nous renvoyons le lecteur à la thèse de J.P. Faroux ⁽²⁾ par exemple. Nous étudions ensuite le déplacement et l'élargissement de la transition 3S - 5S. Ce problème étant très simple théoriquement, nous l'analysons en détail de manière à comprendre qualitativement l'influence des différents types de potentiel sur le déplacement. Nous présentons enfin les calculs de relaxation pour le niveau 4D. Ce cas est plus intéressant dans la mesure où les résultats expérimentaux sont assez nombreux pour permettre des comparaisons fructueuses.

I - HYPOTHESES GENERALES ET PRINCIPE DU CALCUL DES SECTIONS EFFICACES

Nous précisons dans ce paragraphe les principales approximations nécessaires au calcul des sections efficaces.

1°/ Approximation des trajectoires rectilignes

Nous faisons l'approximation de trajectoire classique (approximation semi-classique). Ceci est justifié dans la mesure où la longueur d'onde de de Broglie λ est petite par rapport à la portée de l'interaction. Nous supposons de plus cette trajectoire rectiligne. A la température à laquelle nous travaillons (de l'ordre de 560°K), λ est inférieure ou égale à une unité atomique alors que les sections efficaces que nous avons observées sont de l'ordre de $1300 a_0^2$ à $4900 a_0^2$. L'approximation de trajectoire rectiligne est donc bien valable. Par la suite nous considérerons donc les trajectoires rectilignes définies par le paramètre d'impact \vec{b} et la vitesse relative \vec{V} . L'évolution de l'atome cible est soumise au hamiltonien H :

$$H = H_A + H_C(\vec{R}) \quad (\text{VI-1})$$

H_A décrivant l'évolution de l'atome en absence de perturbateur.

H_C décrivant l'influence du perturbateur. Dans le cas des gaz rares, l'atome perturbateur est isotrope et le hamiltonien d'interaction avec le perturbateur

H_C ne dépend que du vecteur internucléaire \vec{R} . Le mouvement relatif étant fixé

à l'avance, l'interaction avec le perturbateur apparaît donc comme une perturbation dépendant du temps par l'intermédiaire de \vec{R} .

2°/ Approximation d'impact et matrice de relaxation

Nous avons déjà exposé le principe de cette approximation au chapitre IV. Cette approximation suppose que :

- la relaxation s'effectue au moyen de collisions binaires bien séparées dans le temps, la durée τ_c d'une collision étant petite devant l'intervalle entre deux collisions ;
- l'évolution de l'atome en absence de perturbateur est lente par rapport à la durée τ_c de la collision.

Dans ces conditions il n'y a pas de termes d'évolution croisée entre les hamiltoniens H_A et H_C . Ceci permet de définir la matrice de relaxation Φ qui décrit l'effet des collisions sur la matrice densité atomique :

$$\frac{d|\rho\rangle\rangle}{dt} = -\Phi |\rho\rangle\rangle \quad (\text{VI-2})$$

La matrice de relaxation Φ se calcule facilement ⁽³⁾ à partir de la matrice de collision $S(\vec{b}, \vec{V})$ qui décrit l'évolution de l'atome en représentation d'interaction sous l'effet de la collision :

$$|\psi_f\rangle = S(\vec{b}, \vec{V}) |\psi_i\rangle \quad (\text{VI-3})$$

Nous calculons d'abord la variation $\delta\rho$ de la matrice densité sous l'effet d'une collision de paramètre d'impact \vec{b} et de vitesse \vec{V} . Nous moyennons ensuite sur toutes les directions de \vec{b} et \vec{V} . On obtient alors :

$$-\langle\delta\rho\rangle = \Pi(b, V) \rho = \rho - \langle S(\vec{b}, \vec{V}) \rho S^\dagger(\vec{b}, \vec{V}) \rangle$$

les crochets représentent la moyenne sur tous les angles possibles de \vec{b} et \vec{V} . L'opérateur $\Pi(b, V)$ est un opérateur de l'espace de Liouville qui ne dépend plus que des modules de \vec{b} et \vec{V} . La matrice de relaxation Φ s'obtient alors en calculant la variation de la matrice densité par unité de temps et en

moyennant sur les vitesses et les paramètres d'impact. Pendant le temps dt , l'atome subit $2\pi N b db \times V dt$ collisions de paramètre d'impact b et de vitesse V (N étant le nombre de perturbateurs par unité de volume). Si $f(V)$ est la distribution de probabilité de V , on en déduit finalement :

$$\Phi = 2\pi N \int_0^{+\infty} V f(V) dV \int_0^{+\infty} \Pi(b,V) b db \quad (\text{VI-5})$$

3°/ Propriétés de symétrie de la matrice de relaxation

Lorsque la distribution de vitesse et l'état initial des perturbateurs sont isotropes, la matrice de relaxation est invariante par rotation (invariance de nature statistique). Les opérateurs $\Pi(b,V)$ et Φ sont donc des opérateurs scalaires de l'espace de Liouville. En utilisant le théorème de Wigner-Eckart, on peut définir les coefficients $\begin{matrix} L_\alpha L_\beta \\ L_\gamma L_\delta \end{matrix} \Pi^k$:

$$\langle\langle \begin{matrix} L_\alpha L_\beta \\ T \end{matrix} k' | \Pi(b,V) | \begin{matrix} L_\gamma L_\delta \\ T \end{matrix} k \rangle\rangle = \delta_{kk'} \delta_{qq'} \begin{matrix} L_\alpha L_\beta \\ L_\gamma L_\delta \end{matrix} \Pi^k \quad (\text{VI-6})$$

Ces éléments de matrice sont reliés simplement à la matrice de collision. Nous développons pour cela la matrice de collision sur la base des opérateurs tensoriels irréductibles :

$$S(b,V) = \sum_{\chi_\sigma} \begin{matrix} L_\alpha L_\beta \\ L_\alpha L_\beta \end{matrix} S_\sigma^\chi(b,V) \begin{matrix} L_\alpha L_\beta \\ T \end{matrix} \chi_\sigma \quad (\text{VI-7})$$

On trouve alors pour les éléments de matrice de $\Pi(b,V)$ (3, 4) :

$$\begin{matrix} L_\alpha L_\beta \\ L_\gamma L_\delta \end{matrix} \Pi^k(b,V) = \delta_{L_\alpha L_\gamma} \delta_{L_\beta L_\delta} - \sum_{\chi_\sigma} (-1)^{k+\chi+L_\beta+L_\gamma} \begin{matrix} L_\alpha & L_\gamma & \chi \\ L_\delta & L_\beta & k \end{matrix} \begin{matrix} L_\gamma L_\alpha \\ S_\sigma^\chi \end{matrix} (b,V) + \begin{matrix} L_\delta L_\beta \\ S_\sigma^{\chi^*} \end{matrix} (b,V) \quad (\text{VI-8})$$

Nous voyons donc que la matrice de relaxation est simplement reliée à la matrice de collision (relation VI-5 et VI-8). Le problème se ramène donc au calcul de la matrice $S(\vec{b}, \vec{V})$. Avant d'aborder ce point, nous précisons d'abord le potentiel d'interaction H_C .

4° / Développement du potentiel d'interaction sur la base des états moléculaires

Il est classique dans les problèmes de collision de développer le hamiltonien du système sur la base des états de la molécule formée par l'atome cible (le sodium) et le perturbateur (gaz rare). On suppose pour cela les deux noyaux fixés à la distance R . Les états $|\alpha(\vec{R})\rangle$ sont alors les états propres moléculaires d'énergie $V_\alpha(R)$. Le hamiltonien total s'écrit :

$$H(\vec{R}) = \sum_{\alpha} V_{\alpha}(R) |\alpha(\vec{R})\rangle \langle \alpha(\vec{R})| \quad (\text{VI-9})$$

Précisons les axes de coordonnées (figure VI-1) : la trajectoire est parallèle à l'axe Oz et l'axe Oy est perpendiculaire au plan de collision. Soit OZ l'axe joignant la cible au perturbateur et \vec{u} son vecteur unitaire. Nous séparons alors le mouvement de rotation du mouvement radial. Soient $|\alpha(R)\rangle$ les états moléculaires lorsque l'axe internucléaire est porté par Oz et $R(\theta)$ la rotation d'angle θ qui amène l'axe Oz sur l'axe OZ .

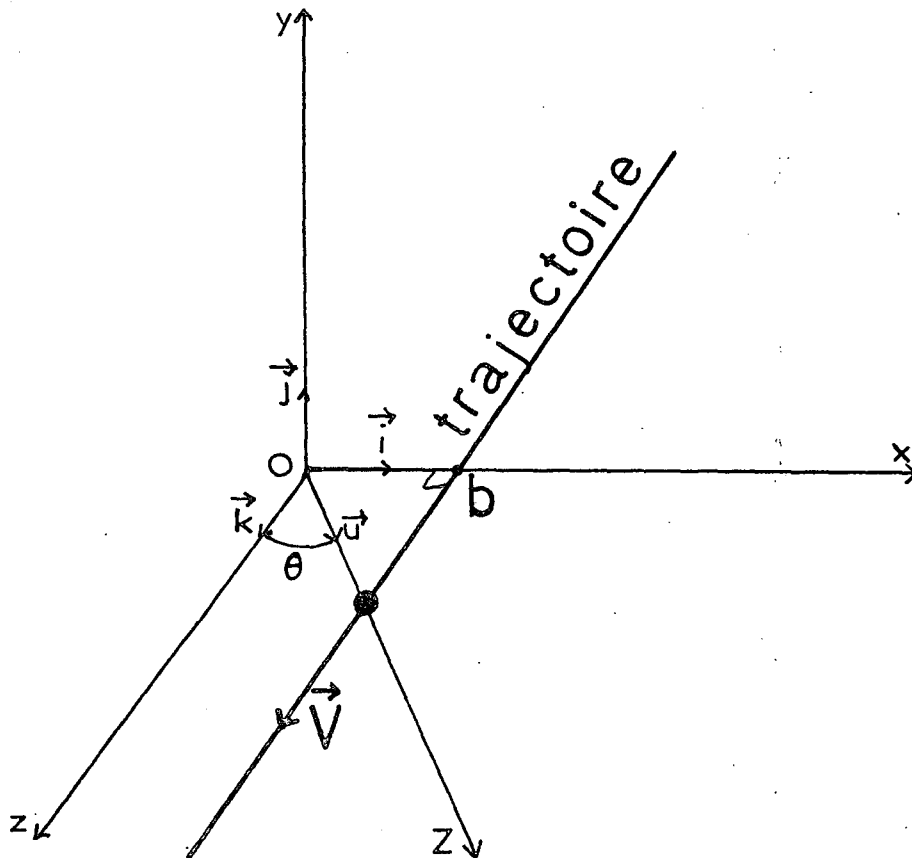


Figure VI-1

On écrit alors :

$$H(\vec{R}) = \sum_{\alpha} V_{\alpha}(R) R(\theta) |\alpha(R)\rangle \langle \alpha(R)| R(\theta)^{\dagger} \quad (\text{VI-10})$$

Nous voyons donc que pour déterminer le hamiltonien d'interaction il faut connaître à la fois les énergies $V_{\alpha}(R)$ et les fonctions d'onde $|\alpha(R)\rangle$.

Par la suite, nous allons nous limiter au cas d'un atome cible ayant seulement un moment cinétique orbital \vec{L} et nous négligerons le couplage spin orbite et les interactions magnétiques entre l'atome et le perturbateur. Nous avons vu aux chapitres IV et V que nos mesures pouvaient se ramener à ce cas là. Nous pouvons alors préciser les états $|\alpha(R)\rangle$. Lorsque les atomes sont séparés l'état $|\alpha(\infty)\rangle$ est simplement un produit tensoriel :

$$|\alpha(\infty)\rangle = |a L M\rangle \otimes |p\rangle \quad (\text{VI-11})$$

a représente les nombres quantiques de l'atome cible, p l'état du perturbateur (nous nous plaçons dans le cas des gaz rares pour lesquels le moment cinétique est nul). Cet état est $2L+1$ fois dégénéré. Lorsque les deux atomes sont à distance finie, cette dégénérescence est levée. *Le hamiltonien d'interaction étant invariant par rotation autour de l'axe internucléaire, la projection du moment cinétique orbital sur l'axe internucléaire reste un bon nombre quantique Λ .* De plus, dans la mesure où l'on néglige les interactions magnétiques, le hamiltonien d'interaction avec le perturbateur est *invariant par réflexion par rapport à tout plan contenant l'axe internucléaire.* Dans ces conditions les états Λ et $-\Lambda$ garderont la même énergie. Lorsque les atomes se rapprochent, l'état $|\alpha(\infty)\rangle$ va donc se décomposer en $L+1$ niveaux d'énergie caractérisés par la valeur absolue $|\Lambda|$ de la projection du moment cinétique orbital sur l'axe internucléaire. Dans le cas des niveaux 3S et 5S du sodium nous avons donc une courbe de potentiel (état σ) et, dans le cas du niveau 4D il y en a trois (état σ , Π et δ). L'état $|\alpha(R)\rangle$ peut alors s'écrire :

$$|\alpha(R)\rangle = |(a L)\Lambda\rangle \quad \text{VI-12}$$

où seul Λ est un bon nombre quantique, les nombres $(a L)$ étant de faux nombres quantiques définis par continuité à partir de $|\alpha(\infty)\rangle$.

Dans la mesure où l'énergie du premier état excité du perturbateur (gaz rare) est grande, on peut admettre en première approximation que l'état du perturbateur n'est pas modifié. Dans ces conditions on obtient le développement suivant :

$$|\alpha(R)\rangle = |(a L)\Lambda\rangle = \sum_{a' L'} C(\alpha, a', L') |a' L' M = \Lambda\rangle \otimes |p\rangle \quad (\text{VI-13})$$

La signification physique de l'expression VI-10 du hamiltonien $H(\vec{R})$ est alors très simple :

- l'opérateur $R(\theta)$ provoque des transferts entre les sous-niveaux Zeeman $|a L M\rangle$ et $|a L M'\rangle$.
- l'opérateur $|\alpha(R)\rangle\langle\alpha(R)|$ provoque des transferts entre les niveaux $|a L M\rangle$ et $|a' L' M\rangle$ (quenching).

Dans notre cas, nous allons supposer que le quenching est négligeable. Cela est parfaitement justifié pour les états 3S et 5S qui sont bien isolés, l'écart d'énergie avec le niveau le plus proche étant grand devant l'inverse de la durée de la collision $1/\tau_c$. Pour le niveau 4D, cela est faux puisque nous avons observé expérimentalement le transfert vers le niveau 4F. Cependant les sections efficaces correspondantes sont petites par rapport aux sections efficaces de relaxation de l'orientation, de l'alignement et du multipole d'ordre trois. Il est donc légitime en première approximation de négliger le quenching pour le calcul de ces sections efficaces de relaxation. Dans ces conditions nous pouvons remplacer les fonctions d'onde $|\alpha(R)\rangle$ par leur valeur à l'infini $|\alpha(\infty)\rangle$. Le hamiltonien $H(\vec{R})$ s'écrit alors :

$$H(\vec{R}) \approx \sum_{\alpha} V_{\alpha}(R) R(\theta) |\alpha(\infty)\rangle\langle\alpha(\infty)| R(\theta)^{\dagger} \quad (\text{VI-14})$$

Il suffit alors de connaître les seules énergies potentielles $V_{\alpha}(R)$ pour faire le calcul de la collision.

5°/ Calcul de la matrice de collision

Ce calcul se fait en résolvant l'équation de Schrödinger : Pour un moment cinétique orbital \vec{L} il y a $L+1$ énergies V_{Λ} et on a :

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\psi\rangle = \sum_M V_{|\Lambda|=|M|} (R) R(\theta) |LM\rangle \langle LM| R^+(\theta) |\psi\rangle \quad (\text{VI-15})$$

En développant $|\psi\rangle$ sur la base des états $|LM\rangle$ on obtient un système de $2L+1$ équations couplées. Il est aussi possible de se placer dans le référentiel tournant avec l'axe internucléaire. Il faut alors poser :

$$|\psi\rangle = R(\theta) |\tilde{\psi}\rangle = e^{-i\theta J_y} |\tilde{\psi}\rangle \quad (\text{VI-16})$$

(J_x , J_y et J_z sont les composantes du moment cinétique divisé par \hbar).

L'équation (VI-15) s'écrit alors :

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\tilde{\psi}\rangle = -\frac{d\theta}{dt} \hbar J_y |\tilde{\psi}\rangle + \sum_M V_{|M|} (R) |LM\rangle \langle LM| |\tilde{\psi}\rangle \quad (\text{VI-17})$$

On obtient la matrice de collision \tilde{S} dans le référentiel tournant en résolvant l'équation VI-17 pour les $2L+1$ états initiaux $|LM\rangle$. La matrice de collision dans le référentiel fixe s'écrit alors, l'angle θ ayant varié de π à 0 au cours de la collision :

$$S = \tilde{S} e^{i\pi J_y} \quad (\text{VI-18})$$

Pour finir, nous rappelons rapidement les principales propriétés de symétrie de la matrice de collision.

a) Unitarité

En tant qu'opérateur d'évolution la matrice de collision est unitaire :

$$S S^+ = I \quad (\text{VI-19})$$

b) Réflexion par rapport au plan de la trajectoire

A chaque instant le hamiltonien $H(\vec{R})$ est invariant dans une réflexion par rapport au plan de la trajectoire (plan zOx). Dans une telle réflexion l'état $|LM\rangle$ se transforme en $(-1)^M |L-M\rangle$. On en déduit la relation suivante pour les éléments de la matrice de collision :

$$\langle L-M' | S | L-M \rangle = (-1)^{M+M'} \langle LM' | S | LM \rangle \quad (\text{VI-20})$$

Notons que cette relation n'est valable que pour le référentiel que nous avons choisi (axe Oy perpendiculaire à la trajectoire). Dans les autres cas la relation de symétrie due à la réflexion par rapport au plan de la trajectoire prend une forme différente.

c) Renversement du temps

Le hamiltonien $H(\vec{R})$ n'est pas invariant par renversement du temps, l'angle θ se transformant en $\pi - \theta$. Dans le cas d'une trajectoire rectiligne il est par contre invariant dans le produit du renversement du temps avec une rotation d'angle π autour de Ox . Cependant l'équation de Schrödinger n'est pas invariante dans une telle transformation, $i \hbar \frac{d}{dt} |\psi\rangle$ devenant $-i \hbar \frac{d}{dt} |\psi\rangle$. Elle le devient lorsqu'on considère en plus la conjugaison complexe, l'opérateur $H(\vec{R})$ étant réel ($R(\theta)$ est réel car J_y est purement complexe). Au total l'équation de Schrödinger est invariante dans le produit du renversement du temps avec la rotation de π autour de Ox et avec la conjugaison complexe. Dans ces conditions il suffit de résoudre l'équation de Schrödinger de $t = -\infty$ à $t = 0$. Si $U(-\infty, 0)$ est l'opérateur d'évolution de $-\infty$ à 0 , on a :

$$|\psi(0)\rangle = U(-\infty, 0) |\psi(-\infty)\rangle \quad (\text{VI-21})$$

En appliquant la transformation décrite ci-dessus, on obtient :

$$e^{i \pi J_x} |\psi(0)\rangle^* = U(-\infty, 0) e^{i \pi J_x} |\psi(+\infty)\rangle^* \quad (\text{VI-22})$$

D'où :

$$|\psi(+\infty)\rangle = e^{i\pi J_x} U(-\infty, 0)^+ * e^{-i\pi J_x} |\psi(0)\rangle \quad (\text{VI-23})$$

La complexe conjuguée du conjuguée hermitique étant la matrice transposée que nous notons $U(-\infty, 0)^T$, nous obtenons finalement :

$$|\psi(+\infty)\rangle = e^{i\pi J_x} U(-\infty, 0)^T e^{-i\pi J_x} U(-\infty, 0) |\psi(-\infty)\rangle \quad (\text{VI-24})$$

D'où :

$$S = e^{i\pi J_x} U(-\infty, 0)^T e^{-i\pi J_x} U(-\infty, 0) \quad (\text{VI-25})$$

L'opérateur $e^{-i\pi J_x}$ ne fait qu'échanger les états de base (5) :

$$e^{-i\pi J_x} |LM\rangle = (-1)^L |L-M\rangle \quad (\text{VI-26})$$

La matrice S est donc le produit de l'opérateur $e^{i\pi J_x}$ avec une matrice symétrique. On en déduit que la matrice de collision doit être symétrique par rapport à la deuxième diagonale :

$$\langle LM' | S | LM \rangle = \langle L-M | S | L-M' \rangle \quad (\text{VI-27})$$

Nous voyons finalement qu'il suffit de calculer l'opérateur d'évolution de $-\infty$ à 0 pour en déduire la matrice de collision. Il faut cependant noter que l'expression VI-25 n'est valable que pour le référentiel que nous avons choisi. Pour un autre référentiel on obtiendrait un résultat analogue mais formellement différent (6). De plus nous obtenons une relation très simple (VI-27) car nous nous sommes placés dans l'hypothèse des trajectoires rectilignes.

Nous sommes maintenant en mesure de calculer les sections efficaces qui nous intéressent, à savoir :

- les sections efficaces d'élargissement σ_b et de déplacement σ_d de la transition $3S - 5S$;

- les sections efficaces d'élargissement σ_b et de déplacement σ_d de la transition 3S - 4D, ainsi que les sections efficaces σ_k de relaxation du multipole d'ordre k à l'intérieur du niveau 4D.

Nous commençons par le cas du niveau 5S qui est le plus simple.

II - DEPLACEMENT ET ELARGISSEMENT DE LA TRANSITION 3S - 5S

Nous avons vu au chapitre IV que les coefficients d'élargissement et de déplacement de la transition 3S - 5S sont donnés par les parties réelle et imaginaire du coefficient de relaxation $\frac{L_e L_g}{L_e L_g} \Phi^0$ (g représente l'état fondamental 3S et e l'état excité 5S). Le calcul de cette quantité s'effectue en appliquant le formalisme développé au paragraphe précédent.

1°/ Expression des coefficients d'élargissement et de déplacement

Nous devons d'abord exprimer le coefficient de la matrice de relaxation Φ en fonction de la matrice de collision. A partir des relations VI-5 et VI-8 on obtient :

$$\frac{L_e L_g}{L_e L_g} \Phi^0 = 2 \pi N \int_0^\infty V f(V) dV \int_0^\infty \frac{L_e L_g}{L_e L_g} \Pi^0(b, V) b db \quad (\text{VI-28})$$

Où :

$$\frac{L_e L_g}{L_e L_g} \Pi^0(b, V) = 1 - \sum_{\chi^0} (-1)^{\chi^0 + L_e + L_g} \begin{Bmatrix} L_e & L_e & \chi \\ L_g & L_g & 0 \end{Bmatrix} \frac{L_e L_e}{S_\sigma^\chi(b, V)} \frac{L_g L_g}{S_\sigma^\chi(b, V)} \quad (\text{VI-29})$$

Dans le cas d'un niveau S, le calcul de la matrice de collision S est très simple. Celle-ci se ramène au seul coefficient S_0^0 qui, en absence de quenching, est simplement un facteur de phase $e^{-i\delta}$. On obtient pour le niveau nS en intégrant l'équation de Schrodinger (VI-15) :

$$\delta(nS) = + \frac{1}{h} \int_{-\infty}^{+\infty} V_{nS} [R(t)] dt \quad (\text{VI-30})$$

Nous réécrivons alors l'équation (VI-29) en remplaçant le coefficient $6j$ par sa valeur δ_{χ_0} :

$$\frac{L_e L_g}{L_e L_g} \Pi^0 = 1 - e^{-i\delta(5S) + i\delta(3S)} = E + iD \quad (\text{VI-31})$$

La partie réelle E et la partie imaginaire D de $\frac{L_e L_g}{L_e L_g} \Pi^0$ correspondent à l'élargissement et au déplacement de la raie.

$$\begin{aligned} E &= 1 - \cos [\delta(5S) - \delta(3S)] \\ D &= + \sin [\delta(5S) - \delta(3S)] \end{aligned} \quad (\text{VI-32})$$

Le calcul des sections efficaces d'élargissement et de déplacement se ramène donc au calcul du déphasage (VI-30) et à la moyenne sur les paramètres d'impact et les vitesses (VI-28). Nous allons d'abord examiner ces calculs d'un point de vue qualitatif.

2°/ Description qualitative du déplacement et de l'élargissement des transitions

a) Potentiel d'interaction

Nous devons d'abord préciser l'allure des courbes de potentiel. A longue distance le potentiel est attractif (forces de Van der Waals). L'expression de ce potentiel est classique (voir par exemple la thèse de Faroux, chapitre III, formules III-22, III-23 et III-26). Pour un niveau S on a (nous utilisons les unités atomiques : unité d'énergie e^2/a_0 , unité de longueur a_0) :

$$V_{nS}(R) = - \frac{\alpha e^2 \langle r^2 \rangle_{nS}}{R^6} \quad (\text{VI-33})$$

α désigne la polarisabilité du gaz rare (l'unité est a_0^3), $\langle r^2 \rangle_{nS}$ la valeur moyenne de r^2 dans l'état nS du sodium. Nous avons rappelé dans l'appendice D les approximations nécessaires pour obtenir cette expression.

A plus courte distance, le potentiel devient répulsif lorsque le gaz rare vient "toucher" la fonction d'onde de l'alcalin. Ceci se produit à

des distances de l'ordre du rayon de l'alcalin, soit $n^2 a_0$. A plus courte distance encore, le comportement du potentiel est beaucoup plus difficile à déterminer. Nous retiendrons donc simplement que le potentiel est d'abord attractif, puis devient répulsif au voisinage de $n^2 a_0$ (figure VI-2-a). Par ailleurs nous voyons que le potentiel V_{3S} relatif au niveau fondamental est beaucoup plus faible que le potentiel V_{5S} correspondant à l'état 5S, car pour l'état 3S, $\langle r^2 \rangle$ est beaucoup plus petit que pour l'état 5S. Nous allons donc le négliger dans ce qui suit.

b) Effet des divers types de potentiels

Nous décrivons maintenant les diverses étapes du calcul. Nous considérons d'abord une trajectoire de paramètre d'impact b . Le potentiel $V(t)$ vu par l'atome en fonction du temps est représenté sur la figure VI-2-b. Cette figure correspond au paramètre d'impact b qui est indiqué sur la figure (VI-2-a) : entre les instants $t = -\infty$ et $t = 0$, le potentiel $V(t)$ vu par l'atome décroît d'abord jusqu'au potentiel minimum V_m , puis croît du potentiel minimum V_m au potentiel de plus courte approche V_A . De $t = 0$ à $t = +\infty$ le potentiel $V(t)$ vu par l'atome a le comportement inverse. Nous devons alors calculer le déphasage $\delta(nS)$ pour cette trajectoire c'est-à-dire l'intégrale de $V(t)$. Qualitativement, la variation de ce déphasage $\delta(nS)$ est analogue à celle du potentiel V_{nS} . En effet, pour les grands paramètres d'impact, le potentiel au point de plus courte approche est négatif et l'intégrale de $V(t)$ est aussi négative. Par contre, pour des paramètres d'impact plus petit, le potentiel au point de plus courte approche devient positif (cas de la figure VI-2-b). Dans ce cas, si la variation de la partie répulsive du potentiel est suffisamment rapide, la partie positive du potentiel $V(t)$ (marquée + sur la figure VI-2-b) peut devenir prépondérante et le déphasage $\delta(nS)$ peut être positif. On peut donc dire que la variation du déphasage $\delta(nS)$ en fonction du paramètre d'impact est grossièrement la même que celle du potentiel $V_{nS}(R)$, si ce n'est qu'elle doit être légèrement décalée vers les petits paramètres d'impact (figure VI-2-c). Finalement les coefficients d'élargissement et de déplacement se calculeront à partir des quantités E et D définies en (VI-32). Ces quantités ont été représentées sur les figures (VI-2-d et e).

Nous voyons que E et D varient lentement pour les grands paramètres d'impact, puis oscillent rapidement (autour de 1 et 0 respectivement) lorsque le paramètre d'impact diminue. La limite entre ces deux zones de comportement correspond au paramètre d'impact b_0 pour lequel la valeur absolue du déphasage est de π . On peut en déduire plusieurs conséquences :

- Les coefficients d'élargissement et de déplacement seront très peu sensibles au potentiel à courte portée ($R < b_0$), puisque dans cette zone E et D se moyennent à 1 et 0. En particulier de déplacement dépend essentiellement du potentiel à longue portée ($R > b_0$). Il faut cependant noter que, si par exemple le potentiel $V(R)$ redevient attractif à courte distance, le déphasage δ peut être stationnaire pour certaines valeurs du paramètre d'impact. Ces valeurs de phase stationnaire peuvent alors donner une contribution importante au déplacement et à l'élargissement. Cependant cet effet est moins important qu'il ne semble dans la mesure où l'on obtient les sections efficaces après avoir multiplié E et D par le paramètre d'impact b (équation VI-28 et VI-31), ce qui favorise les grands paramètres d'impact.
- Le signe du déplacement dépend du signe du déphasage δ pour la valeur critique b_0 . Si le potentiel attractif est assez important, le déphasage atteint d'abord la valeur critique de $-\pi$. (C'est le cas qui est représenté sur la figure VI-2-c). La contribution de D est alors essentiellement négative. Par contre, si le potentiel répulsif est plus important, le minimum δ_m du déphasage pourra être supérieur à $-\pi$. Dans ce cas E et D n'oscilleront que lorsque le déphasage aura atteint la valeur de $+\pi$. La contribution de D est alors positive.

En conclusion nous pouvons dire qu'un potentiel purement attractif provoque un déplacement négatif, un potentiel purement répulsif l'inverse. Ceci permet de comprendre pourquoi les gaz rares lourds (Ar, Kr, Xe) provoquent un déplacement négatif, alors que le déplacement induit par l'hélium est positif, le néon étant généralement un cas intermédiaire. En effet la polarisabilité α des gaz rares croît de l'hélium au xénon. Le potentiel attractif (équation VI-33) est donc plus important pour les gaz rares lourds que pour l'hélium.

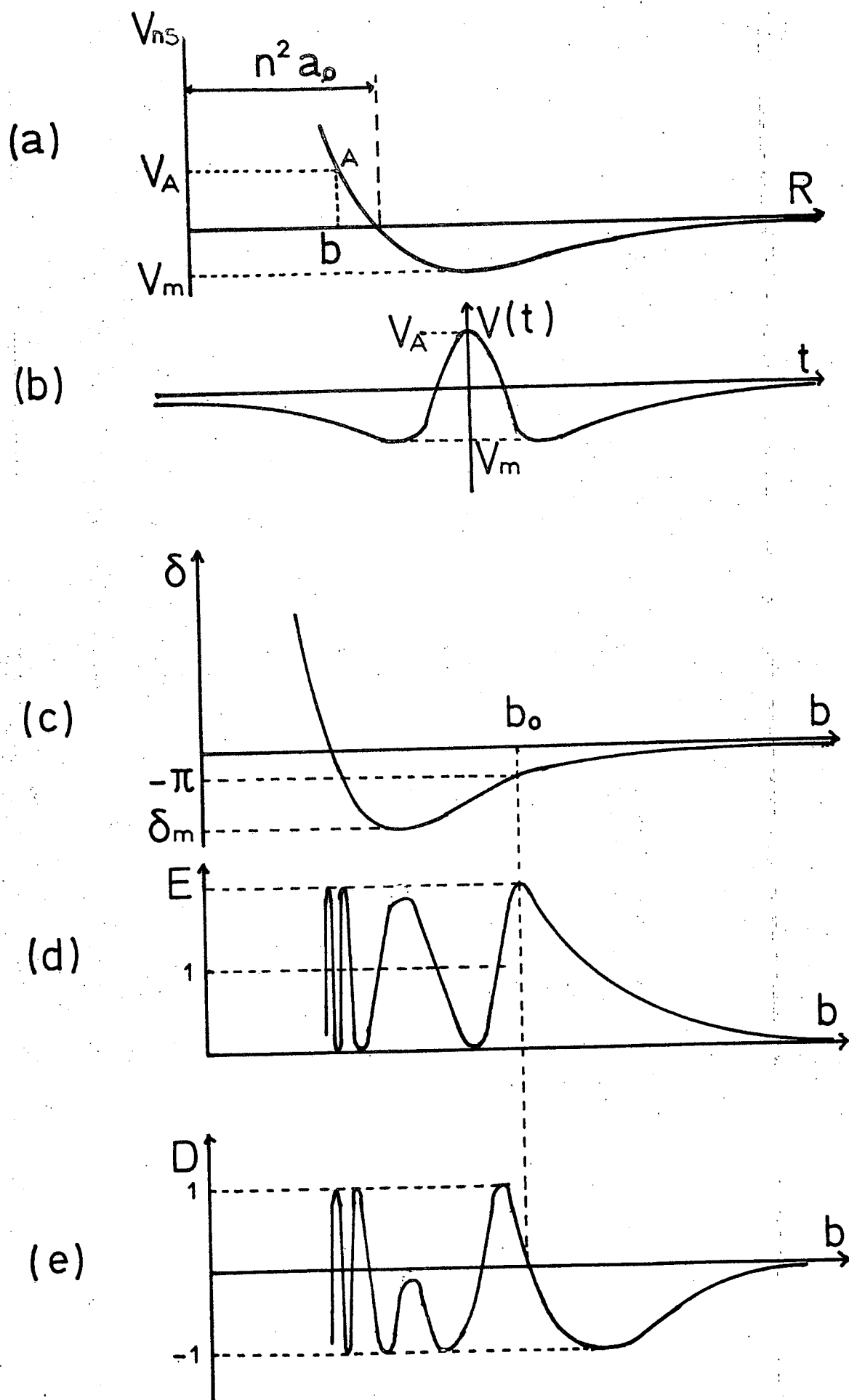


Figure VI_2

Précisons enfin que les raisonnements que nous venons de faire deviennent sans doute faux lorsque l'atome est trop gros, c'est-à-dire lorsque l'électron est très loin du coeur. Dans ce cas la réduction du potentiel attractif au terme en $1/R^6$ n'est plus valable (il faut tenir compte des termes d'ordre supérieur) et d'autre part, la zone à moyenne portée du potentiel ($R < n^2 a_0$) doit avoir à nouveau de l'influence. En effet, la partie répulsive du potentiel (due à la traversée par le perturbateur de la couche formée par l'électron externe de l'alcalin) doit décroître lorsque l'atome devient trop gros, la fonction d'onde électronique devenant trop étendue. Les résultats qualitatifs que nous avons donnés doivent donc être inexacts pour des états très excités. Nous présentons maintenant les résultats quantitatifs obtenus avec un potentiel de Van der Waals et avec les potentiels calculés par Pascale et Vandepianque (1).

3°/ Calcul de l'élargissement et du déplacement avec un potentiel de Van der Waals

Dans le cas d'un potentiel en $1/R^n$ le calcul peut être mené jusqu'au bout. Ce calcul est tout à fait classique (7). Nous n'en donnerons donc que les grandes lignes. Nous supposons que le potentiel d'interaction s'écrit :

$$V = \frac{C}{R^6} = -\frac{\alpha e^2}{R^6} [\langle r^2 \rangle_{5S} - \langle r^2 \rangle_{3S}] \quad (\text{VI-36})$$

Nous paramétrisons la trajectoire à l'aide de l'angle θ (figure VI-1) ; on obtient :

$$R = \frac{b}{\sin \theta} \quad dt = -\frac{b d\theta}{v \sin^2 \theta} \quad (\text{VI-37})$$

On obtient alors pour le déphasage :

$$\delta = \delta(5S) - \delta(3S) = \frac{1}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} V(t) dt \quad (\text{VI-38})$$

D'où :

$$\delta = \frac{C}{\hbar v b^5} \int_0^\pi \sin^4 \theta d\theta = \frac{3}{8} \pi \times \frac{C}{\hbar v b^5} \quad (\text{VI-39})$$

Nous faisons alors la moyenne sur le paramètre d'impact (équations VI-28 et VI-31) :

$$\sigma(V) = 2\pi \int_0^{+\infty} \frac{L_e L_g}{L_e L_g} \Pi^o(b, V) b db \quad (\text{VI-40})$$

Les parties réelle et imaginaire de $\sigma(V)$ sont les sections efficaces d'élargissement $\sigma_b(V)$ et de déplacement $\sigma_d(V)$ relatives à la vitesse V * :

$$\sigma(V) = \sigma_b(V) + i \sigma_d(V) \quad (\text{VI-41})$$

Nous exprimons l'intégrale VI-40 :

$$\sigma(V) = 2\pi \int_0^{\infty} \left[1 - e^{-i \frac{3\pi}{8\hbar} \frac{C}{V b^5}} \right] b db \quad (\text{VI-42})$$

En posant : $x = b \left(\frac{8\hbar V}{3\pi C} \right)^{1/5}$ on obtient :

$$\sigma(V) = 2\pi \left(\frac{3\pi C}{8\hbar V} \right)^{2/5} \int_0^{\infty} (1 - e^{-i/x^5}) x dx \quad (\text{VI-43})$$

L'intégrale en x peut s'exprimer à partir de fonction Γ (7). On obtient finalement :

$$\sigma_b(V) = 4,08 \left(\frac{C}{\hbar V} \right)^{2/5} \quad \sigma_d(V) = -2,96 \left(\frac{C}{\hbar V} \right)^{2/5} \quad (\text{VI-44})$$

Il ne reste plus qu'à intégrer sur les vitesses (équation VI-28) :

$$\frac{L_e L_g}{L_e L_g} \Phi^o = N \int_0^{\infty} \sigma(V) V f(V) dV \quad (\text{VI-45})$$

Il faut donc en fait calculer la moyenne de $V^{3/5}$. On peut montrer que, dans une très bonne approximation on a :

$$\int_0^{\infty} V^{3/5} f(V) dV \approx (\bar{V})^{3/5} \quad (\text{VI-46})$$

où \bar{V} représente la vitesse relative moyenne :

$$\bar{V} = \sqrt{\frac{8kT}{\pi\mu}} \quad (\text{VI-47})$$

* L'indice b de $\sigma_b(V)$ n'a aucun rapport avec le paramètre d'impact b .

On a donc approximativement :

$$\alpha_b \approx 4,08 \left(\frac{\alpha [\langle r^2 \rangle_{5S} - \langle r^2 \rangle_{3S}]}{h} \right)^{2/5} \left(\frac{8kT}{\pi\mu} \right)^{3/10} \quad (\text{VI-47bis})$$

Pour un potentiel en $1/R^6$ les sections efficaces d'élargissement et de déplacement varient en fonction de la température en $T^{3/10}$.

Le problème est donc complètement résolu. Le résultat le plus remarquable est que le rapport S/W du déplacement S sur l'élargissement W est indépendant de la force du potentiel. On a en effet :

$$\frac{S}{W} = \frac{\sigma_d}{2 \sigma_b} = -0,36$$

(Le facteur 2 vient du fait que $L_e L_g \phi^0$ représente la demie largeur de la lorentzienne. Cf. chapitre IV - $L_e L_g$ équations IV-18 et IV-19). Pour calculer numériquement les sections efficaces σ_b et σ_d , il faut connaître la valeur moyenne de r^2 dans l'état 3S et dans l'état 5S. Celle-ci peut se calculer en fonction des forces d'oscillateurs (Faroux, thèse, p. 69) en utilisant les unités atomiques :

$$\langle r^2 \rangle_a = \frac{3}{2} \sum_{a'} \frac{f_{aa'}}{E_{a'} - E_a} \quad (\text{VI-48})$$

On obtient pour l'état 3S : $\langle r^2 \rangle_{3S} \approx 16 a_o^2$

Par contre on ne peut pas appliquer cette formule pour l'état 5S car on ne connaît pas les forces d'oscillateurs. On peut alors utiliser l'expression valable pour les atomes hydrogénéoïdes (5).

$$\langle r^2 \rangle_{n,\ell} = \frac{n^2}{2} [5n^2 + 1 - 3\ell(\ell + 1)] a_o^2 \quad (\text{VI-49})$$

En utilisant le nombre quantique effectif $n^* = 3,65$ (8), on obtient pour le niveau 5S :

$$\langle r^2 \rangle_{5S} = 450 a_o^2$$

Il faut noter que cette valeur est approximative dans la mesure où la valeur

du nombre quantique effectif n^* est ajustée sur l'énergie, c'est-à-dire sur la valeur moyenne de $1/r$ et non sur celle de r^2 . Pour la polarisabilité α du gaz rare, nous avons utilisé les valeurs de DALGARNO et KINGSTON ⁽⁹⁾.

Les résultats numériques (équation VI-47bis) ont été rassemblés dans le tableau suivant :

| | He | Ne | Ar | Kr | Xe |
|------------------------------------|--------|--------|--------|--------|--------|
| α (a_0^3) | 1,384 | 2,663 | 11,080 | 16,734 | 27,292 |
| σ_b (a_0^2) calculée | 900 | 1460 | 2745 | 3390 | 4160 |
| σ_b expérimentale | 2590 | 1770 | 4240 | 4240 | 4930 |
| S/W expérience | + 0,23 | + 0,24 | - 0,32 | - 0,25 | - 0,27 |

97
 Dans le cas de l'hélium et du néon, ces calculs n'ont pratiquement aucun sens, car le potentiel répulsif est prépondérant (le déplacement est positif). Par contre les résultats obtenus pour les gaz rares lourds (Ar, Kr, Xe) sont relativement satisfaisants, la valeur expérimentale du rapport déplacement sur élargissement S/W étant proche de la valeur théorique de - 0,36. Les sections efficaces σ_b calculées pour les gaz rares lourds sont inférieures de 15 % à 35 % aux valeurs expérimentales. Ceci est peut-être dû à une mauvaise estimation de $\langle r^2 \rangle$.

4°/ Utilisation des potentiels de Pascale et Vandepianque

Dans le cas des couples alcalin-gaz rare, Pascale et Vandepianque ⁽¹⁾ ont calculé les courbes de potentiel en utilisant une méthode semi-empirique proposée par Baylis ⁽¹⁰⁾. Nous avons reporté sur la figure VI-3 les courbes de potentiel correspondant au niveau 5S. Nous voyons que le comportement des différents gaz rares varie beaucoup lorsqu'on passe de l'hélium au xénon.

Potentiel sodium(5S) - gaz rare

Calcul de Pascale et Vandeplanque

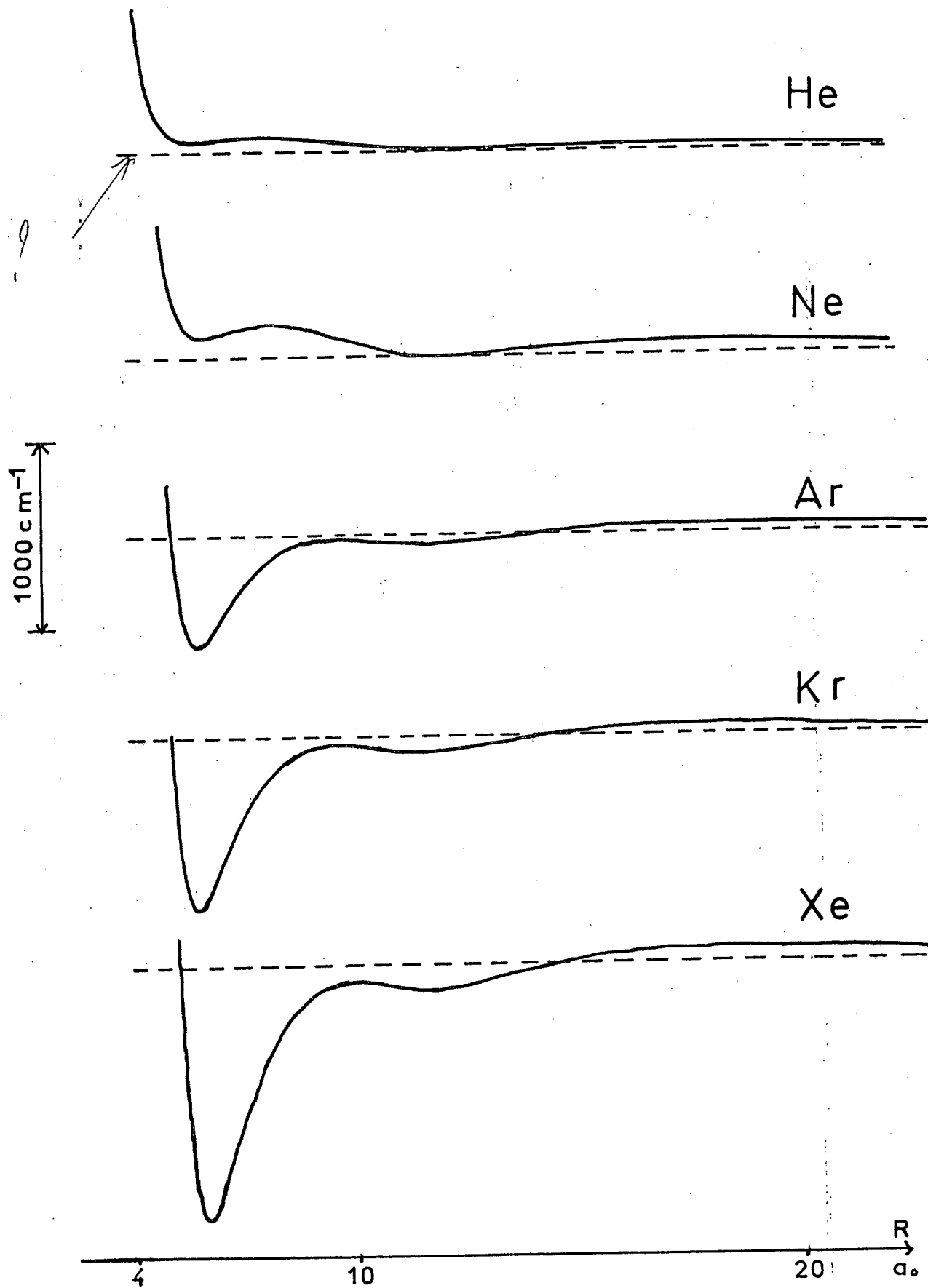


Figure VI .3

Pour tester ces courbes de potentiels nous avons fait le calcul numérique des sections efficaces de déplacement et d'élargissement. Ce calcul a été effectué sur ordinateur Univac 1108. Les intégrales numériques (intégrales sur l'angle θ et le paramètre d'impact b) ont été faites par la méthode de Simpson. Par contre nous n'avons pas intégré sur les vitesses et le calcul a été fait pour la vitesse relative moyenne \bar{V} (équation VI-47). Le temps de calcul est de l'ordre de deux minutes environ.

Nous avons reporté sur les figures VI-4 et VI-5 les variations des quantités E et D (définies en VI-32) en fonction du paramètre d'impact b telles qu'elles résultent du calcul sur ordinateur.

Ces courbes appellent plusieurs commentaires :

- Comportement à longue distance

A longue distance ($b > 30 a_0$ environ) le comportement des gaz rares lourds (Ar, Kr, Xe) se différencie nettement de celui de l'hélium et du néon. Pour les gaz rares lourds, D est négatif aux alentours de $40 a_0$, ce qui est dû au potentiel attractif. Le creux de potentiel correspondant donné par le potentiel de Pascale et Vandepanque est de $0,8 \text{ cm}^{-1}$ environ pour l'argon, le krypton et le xénon. Par contre ce creux n'est que de $0,03 \text{ cm}^{-1}$ pour le néon et l'hélium. Pour ces deux gaz rares, la partie répulsive du potentiel est donc prépondérante à longue distance. Dans cette zone de paramètre d'impact, le calcul fait avec les potentiels de Pascale et Vandepanque confirme donc les raisonnements qualitatifs faits au paragraphe 2°/.

- Comportement à courte distance

A courte distance E et D présentent généralement des oscillations rapides. Cependant le cas de l'hélium fait exception. Dans ce cas on a un point de phase stationnaire entre $7 a_0$ et $20 a_0$ environ. On peut donc en déduire que, excepté pour l'hélium, les sections efficaces que nous calculons sont peu sensibles aux valeurs du potentiel à courte distance.

Pour déduire les sections efficaces des courbes ci-dessus il suffit de faire l'intégrale sur les paramètres d'impact. Nous avons calculé cette

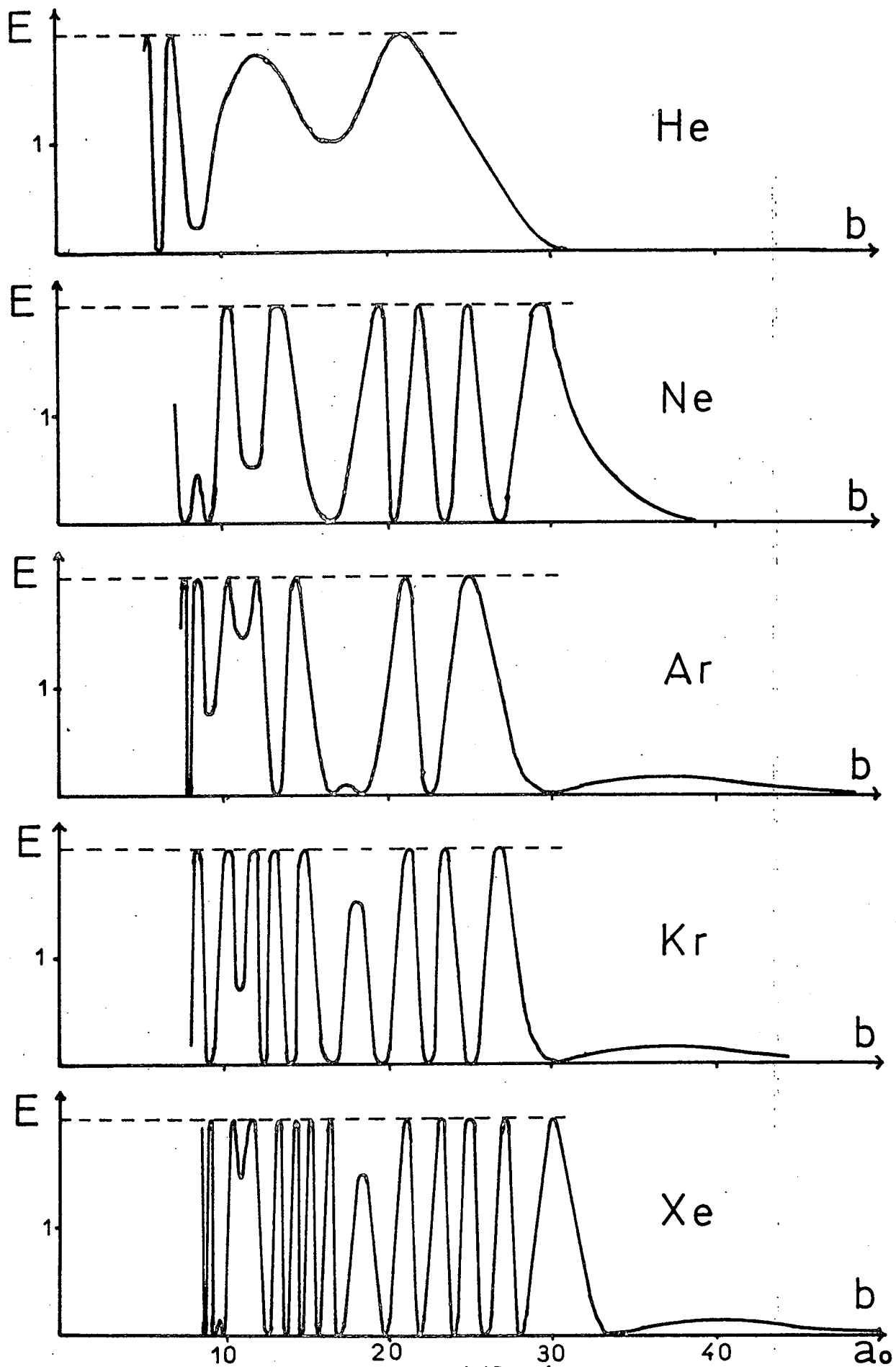


Figure VI_4

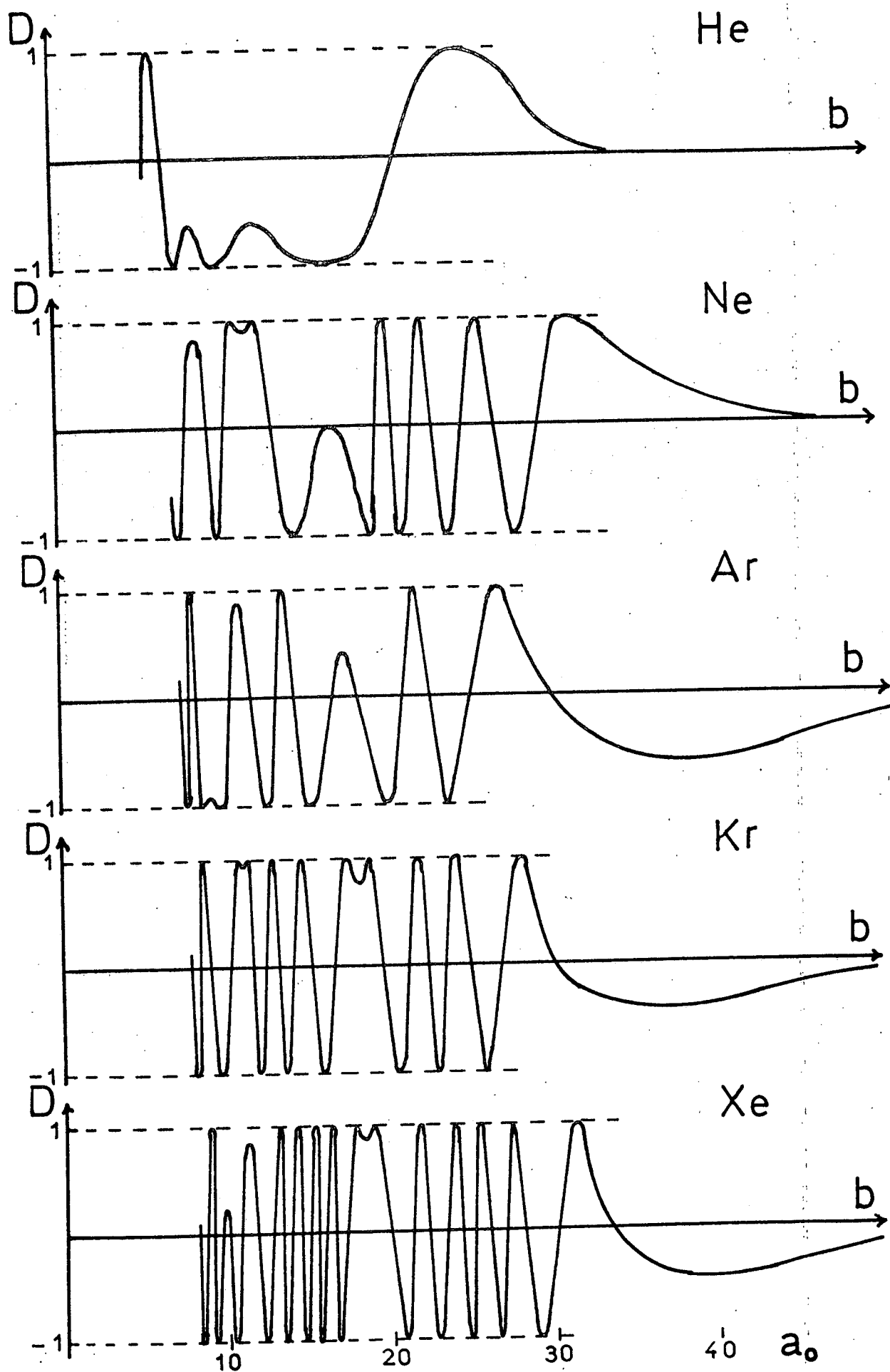


Figure VI_5

intégrale numériquement entre une limite inférieure b_1 et une limite supérieure égale à $65 a_0$. Il faut rajouter à la valeur obtenue Πb_1^2 pour les sections efficaces d'élargissement et zéro pour les sections efficaces de déplacement. L'erreur due à cette approximation peut être estimée à une fraction de Πb_1^2 , c'est-à-dire au plus à $100 a_0^2$ environ. Ceci correspond à une erreur de 3 % à 5 % sur σ_b . Les valeurs numériques ont été rassemblées dans le tableau suivant. Nous y avons indiqué b_1 , la vitesse moyenne \bar{v} , et les valeurs expérimentales de σ_b et S/W.

| | He | Ne | Ar | Kr | Xe |
|------------------------------------|-------|--------|--------|--------|--------|
| b_1 (a_0) | 6 | 8 | 8 | 8 | 8 |
| \bar{v} (m/s) | 1830 | 1065 | 900 | 810 | 780 |
| σ_b (a_0^2) <i>calc</i> | 2905 | 3554 | 2643 | 3090 | 3767 |
| σ_b (expérience) | 2590 | 1770 | 4240 | 4240 | 4930 |
| <i>dépla</i> S/W (calcul) | 0,025 | + 0,09 | - 0,22 | - 0,18 | - 0,20 |
| <i>class</i> S/W (expérience) | 0,23 | 0,24 | - 0,32 | - 0,25 | - 0,27 |

Qualitativement, l'accord avec les résultats expérimentaux est relativement bon dans la mesure où le comportement obtenu pour les gaz rares lourds est bien différent de celui obtenu pour les gaz rares légers. En particulier on trouve un rapport S/W négatif pour l'argon, le krypton et le xénon alors qu'on le trouve positif pour l'hélium et le néon. Cependant l'accord est moins bon dans le détail. Pour les trois gaz rares lourds les sections efficaces calculées sont légèrement trop petites et le rapport S/W est trop petit (en valeur absolue). Ceci semble indiquer que le potentiel attractif à longue portée est trop faible. Pour le néon, c'est la section efficace d'élargissement qui est trop grande d'un facteur deux, alors que la section efficace de déplacement est en bon accord avec l'expérience. Dans ce cas il semble que le potentiel répulsif ait une portée trop grande. Enfin, dans le cas de l'hélium, la valeur obtenue pour le déplacement est beaucoup trop faible. Comme nous

??

977

*Je n'y
comprends
rien*

l'avons déjà dit, ceci est dû à un point de phase stationnaire entre $7 a_0$ et $20 a_0$ dont la contribution vient compenser l'influence du potentiel répulsif à longue portée. Cela tient au fait que le potentiel Na-He est très "plat" jusqu'au voisinage de $10 a_0$ (figure VI-3).

Dans le cas de l'hélium nous avons cherché à regarder quelle pouvait être l'influence de la vitesse. En effet le potentiel d'interaction hélium - sodium est inférieur ou de l'ordre de l'inverse du temps de collision $1/\tau_c$ dans une vaste zone de distance interatomique ($7 a_0 < R$). C'est donc dans ce cas que l'effet des vitesses est le plus important. Les résultats obtenus ont été rassemblés dans le tableau suivant :

| V (m/s) | 915 | 1370 | 1830 | 2740 | 3660 |
|--------------------|------|------|------|------|------|
| $\sigma_b (a_0^2)$ | 3180 | 2005 | 2905 | 3050 | 2280 |
| $\sigma_d (a_0^2)$ | 1170 | 310 | 120 | 1290 | 1780 |

Collisions Sodium - Hélium

Nous voyons que l'effet des vitesses est très important en ce qui concerne le déplacement. En particulier la section efficace de déplacement σ_d passe par un minimum pour la vitesse relative moyenne ($\bar{V} = 1830$ m/s). En pondérant les valeurs obtenues dans le tableau ci-dessus par la distribution de vitesse $f(V)$, on obtient des valeurs approchées de σ_b et σ_d :

| | σ_b | σ_d | S/W |
|------------|--------------|--------------|------|
| Calcul | $2800 a_0^2$ | $670 a_0^2$ | 0,12 |
| Expérience | $2590 a_0^2$ | $1190 a_0^2$ | 0,24 |

Ces résultats sont beaucoup plus proches des valeurs expérimentales que ceux obtenus pour une seule vitesse \bar{V} .

Dans les autres cas (Ne, Ar, Kr, Xe) l'effet des vitesses doit être plus faible. Nous avons cherché à le vérifier dans le cas de l'argon. Les

résultats obtenus sont rassemblés dans le tableau ci-dessus :

| \bar{v} (m/s) | 800 | 850 | 900 | 950 | 1100 |
|------------------------|-------|--------|--------|--------|-------|
| σ_b (a_0^2) | 2800 | 2770 | 2640 | 2770 | 3150 |
| σ_d (a_0^2) | - 990 | - 1060 | - 1190 | - 1220 | - 750 |

Collisions Sodium - Argon

Les variations que l'on observe peuvent atteindre 20 % à 30 %. Cela montre qu'il faudrait en toute rigueur faire l'intégrale sur les vitesses pour obtenir un résultat précis. Les résultats numériques que nous avons obtenus en faisant le calcul pour une seule vitesse ne sont donc qu'une estimation valable à 20 % près.

Par ailleurs nous avons cherché à tester l'approximation des trajectoires rectilignes. Pour cela nous calculons la trajectoire suivie classiquement par l'atome. Le calcul a été fait dans le cas du xénon qui présente les plus fortes variations de potentiel. Conceptuellement, ce type de calcul n'a pas grand sens, l'atome dans l'état fondamental ne suivant pas la même trajectoire que l'atome dans l'état excité. Il faudrait en fait faire un calcul entièrement quantique. Cependant ce calcul permet de voir l'ordre de grandeur des erreurs que l'on commet en prenant des trajectoires rectilignes. Les résultats sont les suivants :

| Xénon | Trajectoire rectiligne | Trajectoire courbe |
|------------|------------------------|--------------------|
| σ_b | $3767 a_0^2$ | $3685 a_0^2$ |
| S/W | - 0,20 | - 0,22 |

Les deux calculs donnent sensiblement des résultats analogues. Nous voyons que l'erreur commise en utilisant des trajectoires rectilignes peut être estimée à 5 % à 10 %.

III - RELAXATION DU NIVEAU 4D

En ce qui concerne le niveau 4D, nous avons mesuré en tout six sections efficaces : sections efficaces d'élargissement et de déplacement de la transition 3S - 4D, sections efficaces de relaxation de la population, de l'orientation, de l'alignement et du multipole d'ordre trois. Ce sont ces sections efficaces que nous allons maintenant calculer. Comme nous l'avons déjà dit ci-dessus (I - 4°/), nous supposons qu'il n'y a pas de quenching, c'est-à-dire que nous ne tenons compte que des transferts entre les sous-niveaux Zeeman du niveau 4D. Dans ces conditions, il n'y a pas de relaxation de la population et le problème se ramène donc à l'étude de la relaxation d'un moment cinétique $L = 2$. Ce problème étant tout à fait classique, nous le traiterons rapidement. Dans un premier paragraphe nous allons présenter les calculs détaillés des sections efficaces. Nous examinerons ensuite quelques approximations classiques puis nous donnerons les résultats des calculs numériques effectués soit avec un potentiel à longue portée, soit avec les potentiels de Pascale et Vandeplanque.

1°/ Calcul des sections efficaces

a) Expression en fonction de la matrice de collision

Dans le cas de la transition à deux photons 3S - 4D, l'opérateur transition à deux photons est un opérateur purement quadrupolaire. On en déduit que les sections efficaces d'élargissement σ_b et de déplacement σ_d sont données par le coefficient de relaxation du quadripole optique $L_e L_g \Phi^2$. Par ailleurs les sections efficaces σ_k de relaxation du multipole d'ordre k sont données par les coefficients G^k :

$$G^k = \frac{L_e L_g \Phi^k}{L L}$$

En utilisant les expressions (VI-5) et (VI-8) on obtient :

$$\sigma_b + i \sigma_d = \left\langle \int_0^\infty \frac{L_e L_g}{L_e L_g} \Pi^2 2\pi b db \right\rangle_{\nu} \quad (\text{VI-50})$$

$$\sigma_k = \left\langle \int_0^\infty \begin{matrix} L & L \\ O & L & L \end{matrix} \Pi^k 2\pi b db \right\rangle_v \quad (VI-51)$$

Les crochets représentent la moyenne sur les vitesses. Les coefficients Π s'expriment en fonction de la matrice de collisions ; en utilisant le fait que le niveau 3S a un moment cinétique nul ($L_g = 0$), on obtient :

$$\begin{matrix} L & O \\ L & O \end{matrix} \Pi^2 = 1 - \frac{1}{\sqrt{2L+1}} \begin{matrix} L & L \\ S & O \\ O & O \end{matrix} (4D) \begin{matrix} O & O \\ S & O \\ O & O \end{matrix} (3S) \quad (VI-52)$$

$$\begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^k = 1 - \sum_{\chi\sigma} (-1)^{k+\chi} \left\{ \begin{matrix} L & L & \chi \\ & L & L \end{matrix} \right\} \left| \begin{matrix} L & L \\ S & \chi \\ O & \sigma \end{matrix} (4D) \right|^2 \quad (VI-53)$$

Nous voyons que les coefficients $\begin{matrix} L & O \\ L & O \end{matrix} \Pi^2$ et $\begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^k$ s'expriment simplement en fonction des mêmes coefficients $\begin{matrix} L & L \\ S & \chi \\ O & \sigma \end{matrix}$ de la matrice de collision. Il est donc légitime de se demander s'il n'existerait pas une relation simple entre les diverses sections efficaces σ_k et σ_b .

b) Relation d'inégalité entre les sections efficaces σ_b et σ_k

Le potentiel relatif au niveau 3S ayant la symétrie sphérique, le coefficient $\begin{matrix} O \\ O \end{matrix} (3S)$ est un simple facteur de phase lorsqu'il n'y a pas de quenching. On a donc dans ces conditions :

$$\left| \begin{matrix} O \\ O \end{matrix} (3S) \right| = 1 \quad (VI-54)$$

Nous considérons alors la quantité : $\sum_k (2k+1) \begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^k$. On a :

$$\sum_k (2k+1) \begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^k = \sum_k (2k+1) - \sum_{\chi\sigma} (-1)^\chi \left| \begin{matrix} L & L \\ S & \chi \\ O & \sigma \end{matrix} \right|^2 \sum_k (-1)^k (2k+1) \left\{ \begin{matrix} L & L & \chi \\ & L & L \end{matrix} \right\} \quad (VI-55)$$

En utilisant les règles de somme des 6-j (Messiah - Appendice C -35b), on obtient :

$$\sum_k \frac{2k+1}{(2L+1)^2} \begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^k = 1 - \frac{\left| \begin{matrix} L & L \\ S & O \\ O & O \end{matrix} \right|^2}{2L+1} \quad (VI-56)$$

Compte-tenu de VI-52 et VI-54, on en déduit :

$$\sum_k \frac{2k+1}{(2L+1)^2} \begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^k = 1 - \left| \begin{matrix} L & 0 \\ L & 0 \end{matrix} \Pi^2 - 1 \right|^2 \quad (\text{VI-57})$$

Soit :

$$\sum_k \frac{2k+1}{(2L+1)^2} \begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^k = 2 \text{ Réel} \begin{matrix} L & 0 \\ L & 0 \end{matrix} \Pi^2 - \left| \begin{matrix} L & 0 \\ L & 0 \end{matrix} \Pi^2 \right|^2 < 2 \text{ Réel} \begin{matrix} L & 0 \\ L & 0 \end{matrix} \Pi^2 \quad (\text{VI-58})$$

En prenant la moyenne sur les paramètres d'impact et les vitesses, on obtient finalement :

$$\overline{\sigma_k} = \sum_k \frac{2k+1}{(2L+1)^2} \sigma_k < 2 \sigma_b \quad \sum_k \frac{2k+1}{(2L+1)^2} = 1 \quad (\text{VI-59})$$

Nous obtenons une relation d'inégalité entre la section efficace moyenne $\overline{\sigma_k}$ et la section efficace d'élargissement σ_b . Nous voyons en particulier que $\overline{\sigma_k}$ peut être supérieur à σ_b .

Dans le cas de collisions fortes (sphères dures) on a :

$$\overline{\sigma_k} = \sigma_b$$

C'est dans le cas de collisions faibles ($\left| \begin{matrix} L & 0 \\ L & 0 \end{matrix} \Pi^2 \right| \ll 1$) que l'on tend vers la limite :

$$\overline{\sigma_k} = 2 \sigma_b$$

Dans notre cas, nous ne pouvons pas vérifier expérimentalement ces inégalités puisque nous n'avons pas mesuré σ_4 .

c) Calcul de la matrice de collision S

Ce calcul se fait en résolvant l'équation VI-17. On obtient un système d'équations couplées. Nous décomposons le vecteur d'état $|\psi\rangle$ sur la base des états $|LM\rangle$:

$$|\psi\rangle = \sum_M C_M |LM\rangle \quad (\text{VI-60})$$

On a alors :

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{d}{dt} c_2 &= +i\hbar \frac{d\theta}{dt} c_1 + v_2 c_2 \\
 i\hbar \frac{d}{dt} c_1 &= i\hbar \frac{d\theta}{dt} (-c_2 + \sqrt{\frac{3}{2}} c_0) + v_1 c_1 \\
 i\hbar \frac{d}{dt} c_0 &= i\hbar \frac{d\theta}{dt} \sqrt{\frac{3}{2}} (-c_1 + c_{-1}) + v_0 c_0 \\
 i\hbar \frac{d}{dt} c_{-1} &= i\hbar \frac{d\theta}{dt} (-\sqrt{\frac{3}{2}} c_0 + c_{-2}) + v_1 c_{-1} \\
 i\hbar \frac{d}{dt} c_{-2} &= i\hbar \frac{d\theta}{dt} (-c_{-1}) + v_2 c_{-2}
 \end{aligned} \tag{VI-61}$$

On obtient un système de cinq équations couplées qui peut se décomposer en deux systèmes indépendants. On pose pour cela :

$$\begin{aligned}
 X_2 &= c_2 + c_{-2} & Y_2 &= c_2 - c_{-2} \\
 X_1 &= c_1 - c_{-1} & Y_1 &= c_1 + c_{-1}
 \end{aligned} \tag{VI-62}$$

On obtient alors :

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{d}{dt} Y_2 &= i\hbar \frac{d\theta}{dt} Y_1 + v_2 Y_2 \\
 i\hbar \frac{d}{dt} Y_1 &= -i\hbar \frac{d\theta}{dt} Y_2 + v_1 Y_1
 \end{aligned} \tag{VI-63}$$

Et :

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{d}{dt} X_2 &= i\hbar \frac{d\theta}{dt} X_1 + v_2 X_2 \\
 i\hbar \frac{d}{dt} X_1 &= i\hbar \frac{d\theta}{dt} (\sqrt{6} c_0 - X_2) + v_1 X_1 \\
 i\hbar \frac{d}{dt} c_0 &= -i\hbar \frac{d\theta}{dt} \sqrt{\frac{3}{2}} X_1 + v_0 c_0
 \end{aligned} \tag{VI-64}$$

Le fait que le système VI-61 se décompose en deux sous systèmes de deux et trois équations est lié à l'invariance du hamiltonien dans une réflexion par rapport à un plan contenant l'axe internucléaire. Cette décomposition est

immédiate lorsqu'on choisit l'axe Oz perpendiculaire au plan de la trajectoire.

Pour obtenir la matrice de collision il suffit de résoudre ce système d'équations pour diverses conditions initiales. Ceci n'est possible exactement que par un calcul numérique. Cependant il est possible de traiter le problème dans le cas de l'approximation adiabatique et celui d'une interaction relaxante faible ⁽²⁾. Nous allons d'abord examiner ces deux approximations classiques.

2°/ Approximations

a) Approximation adiabatique

L'approximation adiabatique est valable lorsque le potentiel d'interaction est fort. Dans ce cas, les potentiels moléculaires V_0 , V_1 et V_2 (relatifs aux états σ , π et δ) sont bien séparés et l'atome suit adiabatiquement chaque niveau. La condition de validité de cette approximation est que les écarts entre ces potentiels soient grands devant $1/\tau_c$, où τ_c est la durée de la collision. Cette approximation n'est donc valable qu'à courte distance et lorsque les potentiels varient rapidement.

La résolution du problème est immédiate en se plaçant dans le référentiel tournant. Après la collision, l'état $|LM\rangle$ est retourné de π à cause de la rotation autour de Oy et déphasé de $e^{i\varphi}$. On a donc :

$$\begin{aligned}
 S|L2\rangle &= e^{i\gamma}|L-2\rangle & S|L-2\rangle &= e^{i\gamma}|L2\rangle \\
 S|L1\rangle &= e^{i\beta}|L-1\rangle & S|L-1\rangle &= e^{i\beta}|L1\rangle \\
 S|L0\rangle &= e^{i\alpha}|L0\rangle
 \end{aligned}
 \tag{VI-65}$$

On décompose alors la matrice S sur les opérateurs tensoriels irréductibles :

$${}^{LL} S \begin{matrix} \chi \\ \sigma \end{matrix} = \text{Tr} \begin{matrix} {}^{LL} T \\ \sigma \end{matrix} \begin{matrix} \chi \\ \sigma \end{matrix} S = \sum_M (-1)^{L+M} \langle LLMM | \chi \sigma \rangle \langle L-M | S | LM \rangle
 \tag{VI-66}$$

La somme se ramène à un seul terme, σ et χ devant être pairs : en effet le coefficient de Clebsch Gordan $\langle LLMM|\chi\sigma\rangle$ est proportionnel au coefficient $3j \begin{pmatrix} L & L & \chi \\ M & M & -\sigma \end{pmatrix}$. Ce coefficient ayant deux colonnes identiques est nul si χ et σ sont impairs. Compte tenu des relations (VI-65), on en déduit :

$$\sum_{\sigma} \left| \begin{matrix} LL & S & \chi \\ & & \sigma \end{matrix} \right|^2 = (2\chi + 1) \sum_{\sigma} \left(\begin{matrix} L & L & \chi \\ \sigma/2 & \sigma/2 & -\sigma \end{matrix} \right)^2 \quad (\text{VI-67})$$

On obtient alors en reportant en VI-53 :

$$\begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^k = 1 - \sum_{\chi\sigma} (-1)^{k+\chi} (2\chi+1) \left(\begin{matrix} L & L & \chi \\ \sigma/2 & \sigma/2 & -\sigma \end{matrix} \right)^2 \left\{ \begin{matrix} L & L & \chi \\ L & L & k \end{matrix} \right\} \quad (\text{VI-68})$$

Les coefficients $3j$ et $6j$ se resomment (Messiah - Appendice C - formule 34) et on a finalement :

$$\begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^k = 1 - \frac{(-1)^k}{2k+1} \quad (\text{VI-69})$$

On a donc :

$$\begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^0 = 0 \quad \begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^1 = \frac{4}{3} \quad \begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^2 = \frac{4}{5} \quad \begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^3 = \frac{8}{7}$$

$$\begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^4 = \frac{8}{9} \quad (\text{VI-70})$$

Le coefficient $\begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^0$ est nul parcequ'il n'y a pas de quenching. L'ordre des coefficients de relaxation des différents multipoles est bien déterminé. En se limitant à ceux que l'on a mesuré ($k = 1, 2, 3$), l'approximation adiabatique donne donc pour les sections efficaces :

$$\sigma_2 < \sigma_3 < \sigma_1$$

Nous examinons maintenant le cas d'une interaction relaxante faible.

b) Approximation asymptotique

Cette approximation est valable dans le cas où le hamiltonien d'interaction est assez petit pour que l'on puisse faire un calcul de perturbation. Dans ce cas il est classique de décomposer le hamiltonien d'interaction sur la base des opérateurs tensoriels irréductibles ${}^{LL} T_q^K$. On écrit :

$$H(R) = \sum_K V^K(R) {}^{LL} T_o^K \quad (\text{VI-71})$$

La somme ne fait intervenir que des grandeurs longitudinales ($q = 0$) à cause de l'invariance par rotation autour de l'axe internucléaire et des ordres pairs (K pair) à cause de l'invariance dans une réflexion par rapport à un plan contenant l'axe internucléaire. On a donc trois potentiels V^0 , V^2 et V^4 qui sont simplement reliés aux potentiels moléculaires V_o , V_1 et V_2 . On utilise pour cela le développement suivant :

$$|LM\rangle\langle LM| = \sum_K (-1)^{L-M} \langle LLM-M|k_o\rangle T_o^K \quad (\text{VI-72})$$

On obtient alors :

$$\begin{aligned} (K=0) \quad V^0 &= \frac{1}{\sqrt{5}} (V_o + 2V_1 + 2V_2) \\ (K=2) \quad V^2 &= \frac{1}{\sqrt{14}} (-2V_o - 2V_1 + 4V_2) \\ (K=4) \quad V^4 &= \frac{1}{\sqrt{70}} (6V_o - 8V_1 + 2V_2) \end{aligned} \quad (\text{VI-73})$$

Nous allons examiner le cas où la partie anisotrope du hamiltonien d'interaction est d'un ordre tensoriel bien déterminé (dans notre cas deux ou quatre).

Nous reprenons l'expression des coefficients ${}^{LL} \Pi^k$ en fonction de la matrice de collision. Nous tenons compte de l'unitarité de la matrice S :

$$\sum_{\chi\sigma} \left| {}^{LL} S_{\sigma}^{\chi} \right|^2 = 2L + 1 \quad (\text{VI-74})$$

On obtient alors à partir de l'équation VI-53 :

$${}^{LL} \Pi^k = \sum_{\chi=1}^{2L} \left(\frac{1}{2L+1} - (-1)^{k+\chi} \left\{ \begin{matrix} L & L & \chi \\ L & L & k \end{matrix} \right\} \right) \left(\sum_{\sigma} \left| {}^{LL} S_{\sigma}^{\chi} \right|^2 \right) \quad (\text{VI-75})$$

Considérons le cas d'une interaction relaxante d'ordre tensoriel K . Le calcul de perturbation au premier ordre montre alors que la matrice de collision est égale à la matrice unité (ordre zéro) corrigé d'un terme correctif d'ordre tensoriel K . Dans ce cas la somme de l'expression VI-75 se réduit à un seul terme $\chi = K$. Les divers coefficients $g_{k K}^{L L \Pi^k}$ sont alors proportionnels aux coefficients $g_{k K}^L$:

$$g_{k K}^L = \frac{1}{2L+1} - (-1)^k \begin{Bmatrix} L & L & K \\ L & L & k \end{Bmatrix} \quad (\text{VI-76})$$

Les valeurs numériques de ces coefficients dans le cas du niveau 4D ($L = 2$) ont été rassemblées dans le tableau suivant :

| | Potentiel en T_o^2 ($K = 2$) | Potentiel en T_o^4 ($K = 4$) |
|-------------|-------------------------------------|-------------------------------------|
| $g_{1 K}^2$ | 7/70 | 14/42 |
| $g_{2 K}^2$ | 17/70 | 6/42 |
| $g_{3 K}^2$ | 22/70 | 9/42 |
| $g_{4 K}^2$ | 12/70 | 25/126 |

Les deux types de potentiels donnent un ordre différent pour les sections efficaces σ_k . Dans le cas d'un potentiel d'ordre tensoriel 2, on a (en se limitant aux sections efficaces que l'on a mesurées) :

$$\sigma_1 < \sigma_2 < \sigma_3$$

Par contre, dans le cas d'un potentiel d'ordre tensoriel 4, on a :

$$\sigma_2 < \sigma_3 < \sigma_1$$

La "hiérarchie" des σ_k que l'on obtient dans ce dernier cas est tout à fait analogue au résultat de l'approximation adiabatique. Par contre un potentiel en T_o^2 donne une hiérarchie différente ; σ_2 a une valeur intermédiaire entre σ_1 et σ_3 et σ_1 est inférieur à σ_3 .

c) Discussion qualitative des résultats expérimentaux

Qualitativement l'effet des cinq gaz rares est nettement différent pour les gaz rares lourds (Ar, Kr, Xe) et pour les gaz rares légers (He, Ne)

- Pour les gaz rares lourds, le rapport de déplacement sur élargissement S/W est de l'ordre de $-0,30$. Ceci montre que c'est la partie attractive du potentiel à longue distance qui a une influence prépondérante sur l'élargissement et le déplacement de la transition à deux photons. Par ailleurs, pour ces trois gaz l'ordre des sections σ_k mesurées expérimentalement est le suivant :

$$\sigma_1 < \sigma_2 < \sigma_3$$

Comme nous l'avons déjà signalé, cet ordre correspond expérimentalement au fait que nous n'observons pas de transfert d'alignement pour ces trois gaz. Cette hiérarchie des σ_k semble indiquer que la relaxation est plutôt due à un potentiel faible en T_o^2 .

- Pour l'hélium et le néon, le rapport déplacement sur élargissement S/W est respectivement de $+0,11$ et $-0,10$. La partie répulsive du potentiel a donc alors une influence prépondérante. De plus l'ordre expérimental des sections efficaces est le suivant :

$$\sigma_2 < \sigma_1, \sigma_3$$

Dans la mesure où σ_1 et σ_3 sont très voisins, cet ordre correspondrait plutôt au cas de l'approximation adiabatique. Ceci montre que la relaxation n'est pas due au potentiel à longue portée (potentiel faible) mais au potentiel fort à courte et moyenne portée.

Nous allons maintenant présenter les résultats quantitatifs obtenus par le calcul numérique. Pour ces calculs nous avons utilisé soit les potentiels à longue portée, soit les potentiels de Pascale et Vandepianque. Nous précisons d'abord la forme du potentiel à longue portée pour le niveau 4D.

3°/ Potentiel à longue portée

Dans un premier temps nous avons fait les calculs de sections efficaces en utilisant un simple potentiel de Van der Waals en $1/R^6$ dû au terme dipole - dipole de l'interaction électrostatique au second ordre. Comme nous le verrons ci-dessous (§ 4-a) il nous est apparu que la partie anisotrope de ce potentiel est trop faible. C'est pourquoi nous avons été amené à prendre en compte le terme suivant du développement du potentiel en puissance de $1/R$. Ce terme varie en $1/R^8$ et nous précisons dans ce paragraphe son origine. Les calculs détaillés de ce terme ont été reportés dans l'appendice D.

Nous utilisons le développement du hamiltonien d'interaction en moments multipolaires. En notant 1 le sodium et 2 le gaz rare, on peut écrire symboliquement :

$$H(R) = \frac{1}{R^3} D_1 D_2 + \frac{1}{R^4} (D_1 Q_2 + Q_1 D_2) + \frac{1}{R^5} (D_1 O_2 + Q_1 Q_2 + O_1 D_2) + \dots$$

(VI-77)

D , Q et O représentant le dipole, le quadrupole et l'octupole. Dans notre cas on peut négliger les termes de ce développement qui font intervenir le quadrupole et l'octupole du gaz rare, car ils sont petits par rapport à ceux où intervient le dipole du gaz rare. Le moment d'ordre k de l'atome i étant en gros proportionnel à la puissance k du "rayon" r_i de l'atome i , on a par exemple :

$$\frac{D_1 Q_2}{Q_1 D_2} \approx \frac{r_1 r_2^2}{r_1^2 r_2} = \frac{r_2}{r_1}$$

Le rayon du gaz rare dans l'état fondamental r_2 étant beaucoup plus petit que celui r_1 de l'alcalin dans l'état excité $4D$, on a bien :

$$D_1 Q_2 \ll D_2 Q_1$$

Le raisonnement est analogue pour les termes dipole - quadrupole et quadrupole - quadrupole. En se limitant aux termes où seul le dipole du gaz rare apparaît, on a ⁽¹¹⁾ (l'axe Oz étant l'axe internucléaire) :

$$\begin{aligned}
H(R) &= \frac{e^2}{R^3} (x_1 x_2 + y_1 y_2 - 2z_1 z_2) \\
&+ \frac{3e^2}{2R^4} [r_1^2 z_2 + (2x_1 x_2 + 2y_1 y_2 - 3z_1 z_2) z_1] \\
&+ \frac{e^2}{2R^5} [3r_1^2 (4z_1 z_2 - x_1 x_2 - y_1 y_2) + 5z_1^2 (3x_1 x_2 + 3y_1 y_2 - 4z_1 z_2)]
\end{aligned}
\tag{VI-78}$$

L'énergie d'interaction s'obtient par un calcul de perturbation au second ordre. Dans ce calcul, il est légitime de remplacer le dénominateur d'énergie ΔE par sa valeur moyenne $\overline{\Delta E}$, l'énergie du premier état excité du gaz rare étant grande par rapport à l'énergie d'ionisation du sodium. Ce calcul étant élémentaire nous donnons directement le résultat. L'énergie perturbée V s'écrit :

$$V(R) = -\frac{\alpha e^2 \langle r_1^2 \rangle}{R^6} \left(\frac{1}{2} + \frac{3}{2} \cos^2 \theta \right) - \frac{\alpha e^2 \langle r_1^4 \rangle}{R^8} \left(-\frac{3}{8} - \frac{21}{4} \cos^2 \theta + \frac{145}{8} \cos^4 \theta \right)
\tag{VI-79}$$

α représente la polarisabilité du gaz rare, r_1 la distance de l'électron du sodium au noyau, θ l'angle entre l'axe internucléaire Oz et r_1 . Le premier terme de (VI-79) représente le potentiel de Van der Waals habituel en $1/R^6$, le second terme est la première correction à ce potentiel. Il est obtenu dans le calcul de perturbation à partir du terme en $1/R^4$ de V au second ordre et de l'interférence des termes en $1/R^3$ et $1/R^5$. Pour obtenir les potentiels relatifs aux états σ , π et δ il suffit alors de calculer la valeur moyenne de $\cos^2 \theta$ et $\cos^4 \theta$ pour les harmoniques sphériques Y_2^0 , Y_2^1 et Y_2^2 . Celles-ci s'écrivent :

$$\begin{aligned}
\langle Y_2^0 | \cos^2 \theta | Y_2^0 \rangle &= \frac{11}{21} & \langle Y_2^0 | \cos^4 \theta | Y_2^0 \rangle &= \frac{3}{7} \\
\langle Y_2^1 | \cos^2 \theta | Y_2^1 \rangle &= \frac{3}{7} & \langle Y_2^1 | \cos^4 \theta | Y_2^1 \rangle &= \frac{5}{21} \\
\langle Y_2^2 | \cos^2 \theta | Y_2^2 \rangle &= \frac{1}{7} & \langle Y_2^2 | \cos^4 \theta | Y_2^2 \rangle &= \frac{1}{21}
\end{aligned}$$

On en déduit les potentiels V_0 , V_1 et V_2 :

$$\begin{aligned}
\text{Etat } \sigma(|\Lambda| = 0) \quad V_0 &= -\frac{9}{7} \frac{C_6}{R^6} - \frac{65}{14} \frac{C_8}{R^8} \\
\text{Etat } \pi(|\Lambda| = 1) \quad V_1 &= -\frac{8}{7} \frac{C_6}{R^6} - \frac{71}{42} \frac{C_8}{R^8} \\
\text{Etat } \delta(|\Lambda| = 2) \quad V_2 &= -\frac{5}{7} \frac{C_6}{R^6} + \frac{11}{42} \frac{C_8}{R^8}
\end{aligned} \tag{VI-80}$$

Nous avons posé dans ces relations (en utilisant les unités atomiques) :

$$C_6 = \alpha e^2 \langle r_1^2 \rangle \quad C_8 = \alpha e^2 \langle r_1^4 \rangle \tag{VI-81}$$

C'est cette expression des potentiels à longue portée que nous avons utilisée dans le calcul numérique. Dans le cas du niveau 4D, il n'y a pas de problème pour déterminer r^n , le nombre quantique effectif étant très sensiblement égal à 4. On utilise alors les expressions valables pour un atome hydrogéoïde (Messiah ⁽⁵⁾, appendice B - I - 3°/) :

$$\begin{aligned}
\langle r^2 \rangle &= \frac{n^2}{2} [5n^2 + 1 - 3\ell(\ell+1)] a_0^2 \\
\langle r^4 \rangle &= \frac{n^4}{8} [63n^4 - 35n^2(2\ell^2 + 2\ell - 3) + 5\ell(\ell+1)(3\ell^2 + 3\ell - 10) + 12] a_0^4
\end{aligned} \tag{VI-82}$$

Pour conclure, il est intéressant de regarder les propriétés de symétrie de ce potentiel. On utilise pour cela la décomposition sur les opérateurs T_0^K (équations VI-71 et VI-73) :

$$\begin{aligned}
(K=0) \quad V^0 &= -\sqrt{5} \frac{C_6}{R^6} - \frac{3}{2} \sqrt{5} \frac{C_8}{R^8} \\
(K=2) \quad V^2 &= -\frac{2}{\sqrt{14}} \frac{C_6}{R^6} + \frac{96}{7\sqrt{14}} \frac{C_8}{R^8} \\
(K=4) \quad V^4 &= -\frac{29}{21} \sqrt{\frac{10}{7}} \frac{C_8}{R^8}
\end{aligned} \tag{VI-83}$$

Le potentiel en $1/R^6$ se décompose uniquement sur T_0^0 et T_0^2 . Par contre le potentiel en $1/R^8$ contient un terme en T_0^4 . Cependant les coefficients numériques favorisent d'un facteur deux à trois le terme en T_0^2 . Dans ces conditions la partie anisotrope du potentiel à longue portée est plutôt d'ordre tensoriel deux.

Il est par ailleurs intéressant de comparer les ordres de grandeurs des termes en $1/R^6$ et $1/R^8$. Si r_0 est le rayon de l'atome ($r_0 \sim \langle r^2 \rangle^{1/2} \sim \langle r^4 \rangle^{1/4}$), la zone de potentiel qui va nous intéresser est typiquement comprise entre r_0 et $2r_0$. Dans cette zone on a en moyenne :

$$\frac{C_6}{R^6} \sim 2 \frac{C_8}{R^8}$$

En ce qui concerne la partie isotrope du potentiel, les termes en $1/R^6$ et $1/R^8$ sont sensiblement du même ordre de grandeur. Par contre, pour la partie anisotrope du potentiel, la contribution du terme en $1/R^8$ est environ trois fois supérieure à celle du terme en $1/R^6$. Ceci nous montre qu'on ne peut pas négliger le terme en $1/R^8$. Il est fort probable qu'il en est de même pour les termes suivant du développement ($1/R^{10}$, etc ...), ce qui montre qu'il faut en fait utiliser des potentiels calculés ab-initio. Dans ces conditions les calculs que nous présentons maintenant à partir de ce potentiel à longue portée n'ont qu'une valeur indicative.

4°/ Calcul numérique des sections efficaces

La résolution numérique des systèmes d'équations différentielles VI-63 et VI-64 a été faite par la méthode de Runge-Kutta. Pour diminuer le temps de calcul, nous avons fait cette intégration sur une demi-trajectoire et nous utilisons la relation VI-25 pour obtenir la matrice de collision. Nous avons vérifié dans un cas particulier que le résultat ainsi obtenu était identique à celui obtenu en intégrant sur toute la trajectoire. Nous vérifions par ailleurs que la matrice de collision est unitaire. Connaissant pour chaque paramètre d'impact la matrice de collision, nous en déduisons les coefficients $\begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^k$ et $\begin{matrix} L & O \\ L & O \end{matrix} \Pi^2$ (équation VI-52 et VI-53). Nous faisons alors l'intégrale sur les paramètres d'impact entre une limite inférieure b_1 et $65a_0$. La limite inférieure b_1 est choisie de manière telle que les coefficients $\begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^k$ et $\begin{matrix} L & O \\ L & O \end{matrix} \Pi^2$ oscillent rapidement aux voisinage de b_1 . Pour les paramètres d'impact plus petits que b_1 on remplace alors les coefficients $\begin{matrix} L & L \\ L & L \end{matrix} \Pi^k$ et $\begin{matrix} L & O \\ L & O \end{matrix} \Pi^2$ par leur valeur moyenne. Dans la plupart des cas, cette valeur moyenne est sensiblement égale à 1, ce qui

correspond à des collisions fortes qui détruisent totalement le multipole d'ordre k et déphase complètement le quadrupole optique. Nous n'avons pas intégré sur les vitesses et les calculs ont été faits pour la vitesse moyenne \bar{V} .

Nous avons utilisé trois types de potentiels différents : le potentiel de Van der Waals en C_6/R^6 , le potentiel à longue portée en $C_6/R^6 + C_8/R^8$ et enfin le potentiel calculé par Pascale et Vandepianque. Les résultats obtenus ont été rassemblés dans le tableau suivant. Pour chaque gaz rare nous avons indiqué le paramètre d'impact minimum b_1 (en a_0), les sections efficaces σ_k et σ_b (en $10^2 a_0^2$) et le rapport S/W du déplacement sur l'élargissement. Par ailleurs nous avons reporté à titre d'exemple sur les figures VI-6, VI-7 et VI-8 les variations en fonction du paramètre d'impact d'un coefficient $\frac{L}{L} \frac{L}{L} \Pi^k$ (pour $k = 2$) et des coefficients E et D relatifs à l'élargissement et au déplacement :

$$\frac{L}{L} \frac{L}{L} \Pi^2 = E + i D$$

Ces courbes sont celles obtenues pour l'argon. L'ensemble de ces résultats appellent plusieurs commentaires.

a) Potentiel de Van der Waals en C_6/R^6

Dans le cas du potentiel de Van der Waals, nous n'avons fait qu'un seul calcul pour les cinq gaz rares. Nous utilisons pour cela la variable réduite q :

$$q = \frac{\alpha \langle r^2 \rangle e^2}{h v b^5} \quad (\text{VI-84})$$

ce qui permet de résoudre le système d'équations différentielles indépendamment du gaz rare. Dans ces conditions les rapports entre les diverses sections efficaces σ_k et σ_b sont indépendants du gaz rare.

Dans le cas de l'hélium et du néon nous avons déjà vu que la partie répulsive du potentiel avait une influence prépondérante. Les résultats obtenus pour ces deux gaz rares avec le potentiel de Van der Waals n'ont donc aucune signification. Pour les gaz rares lourds la situation

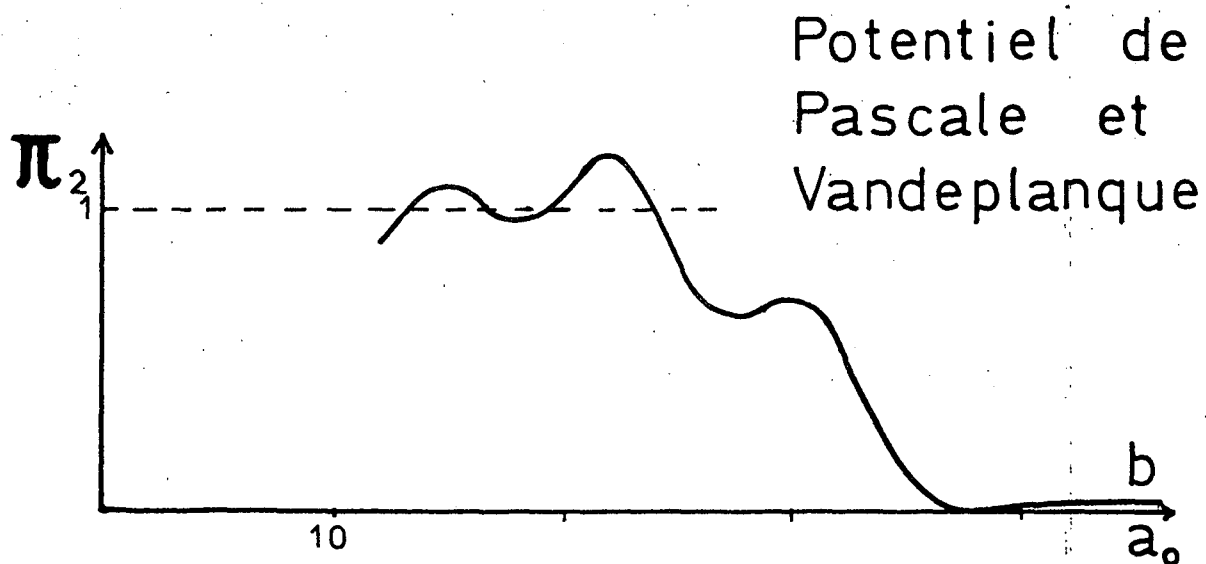
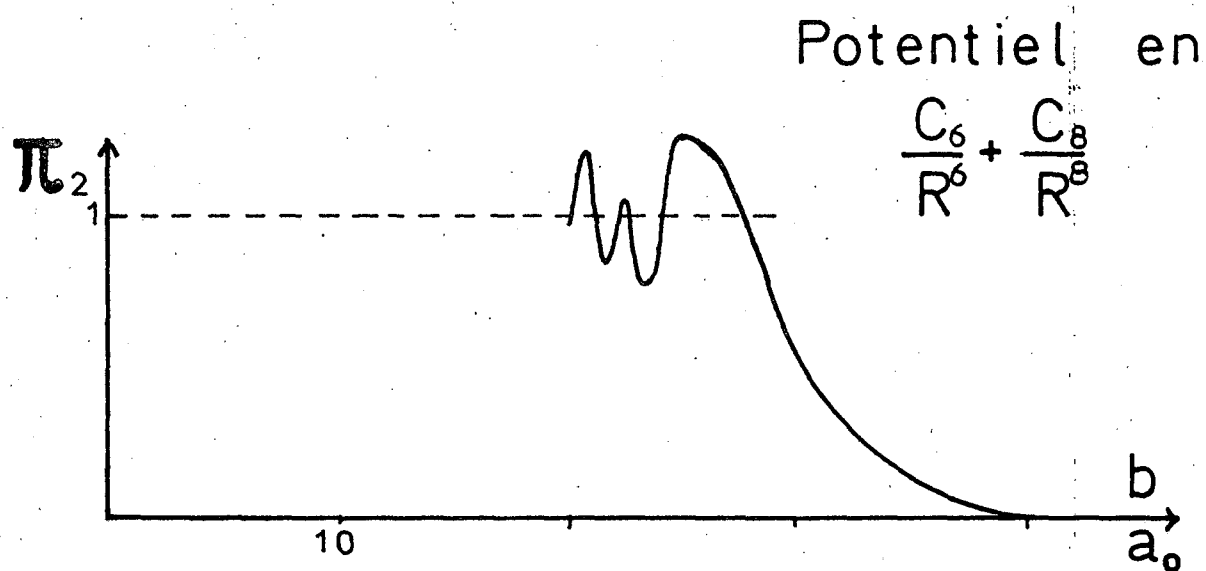
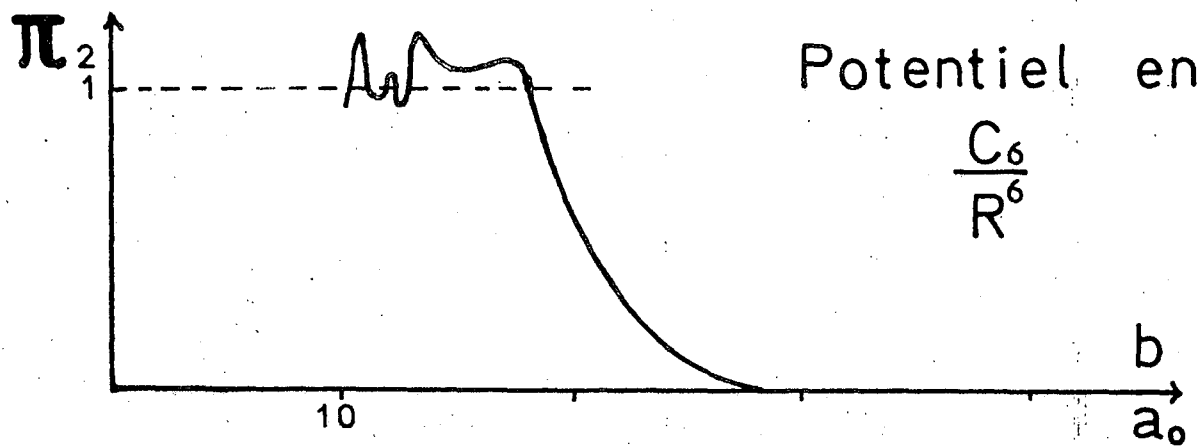


Figure VI_6

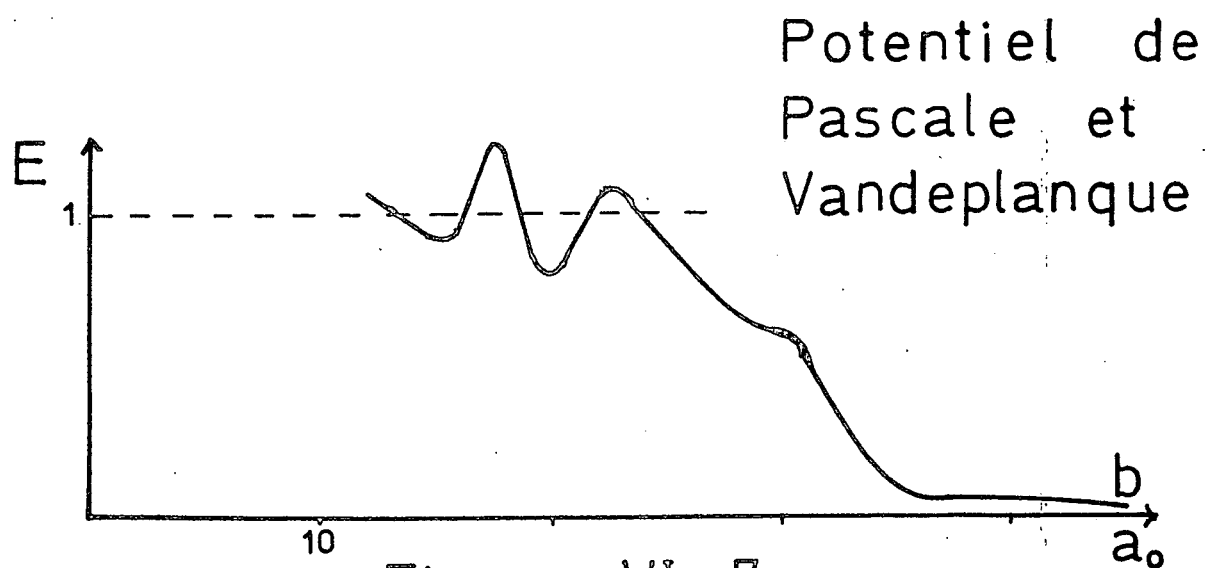
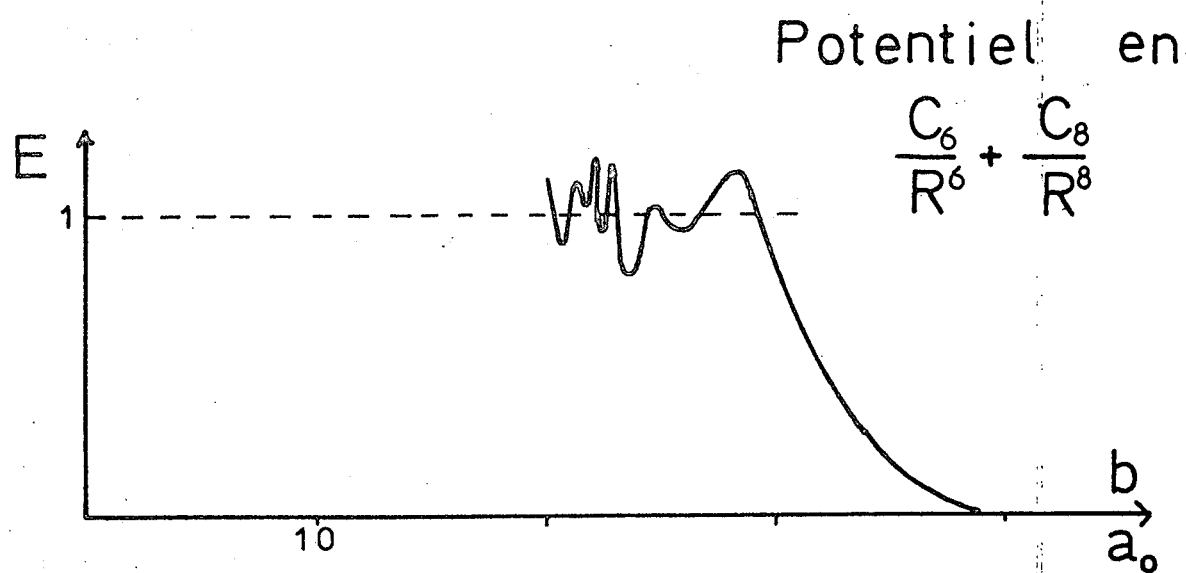
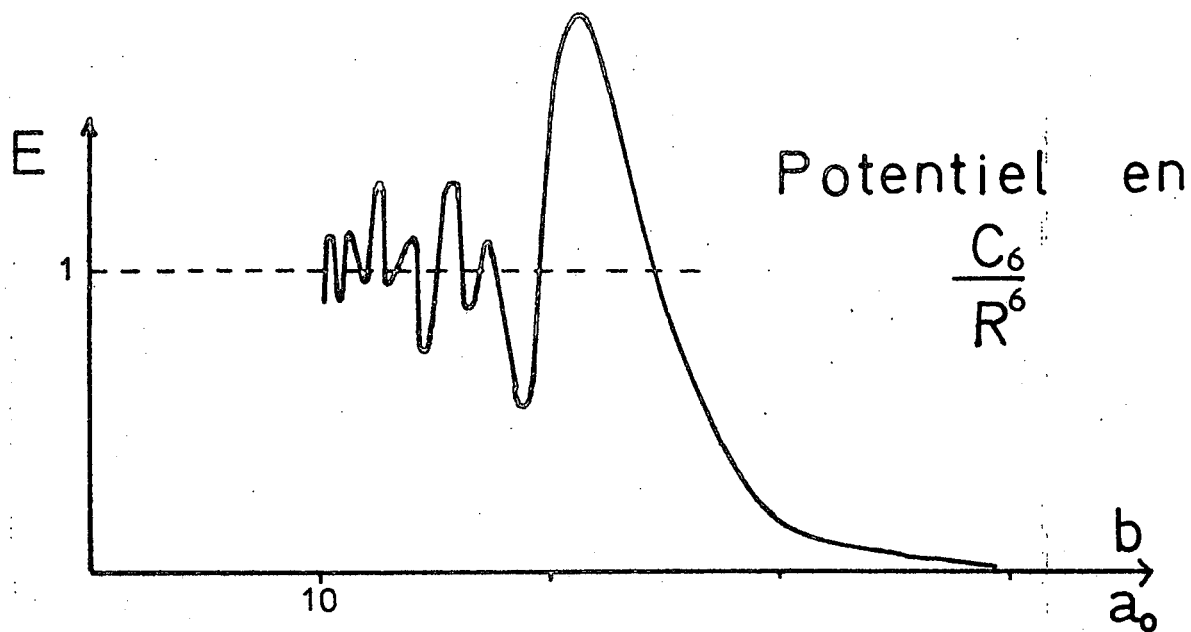


Figure VI_7

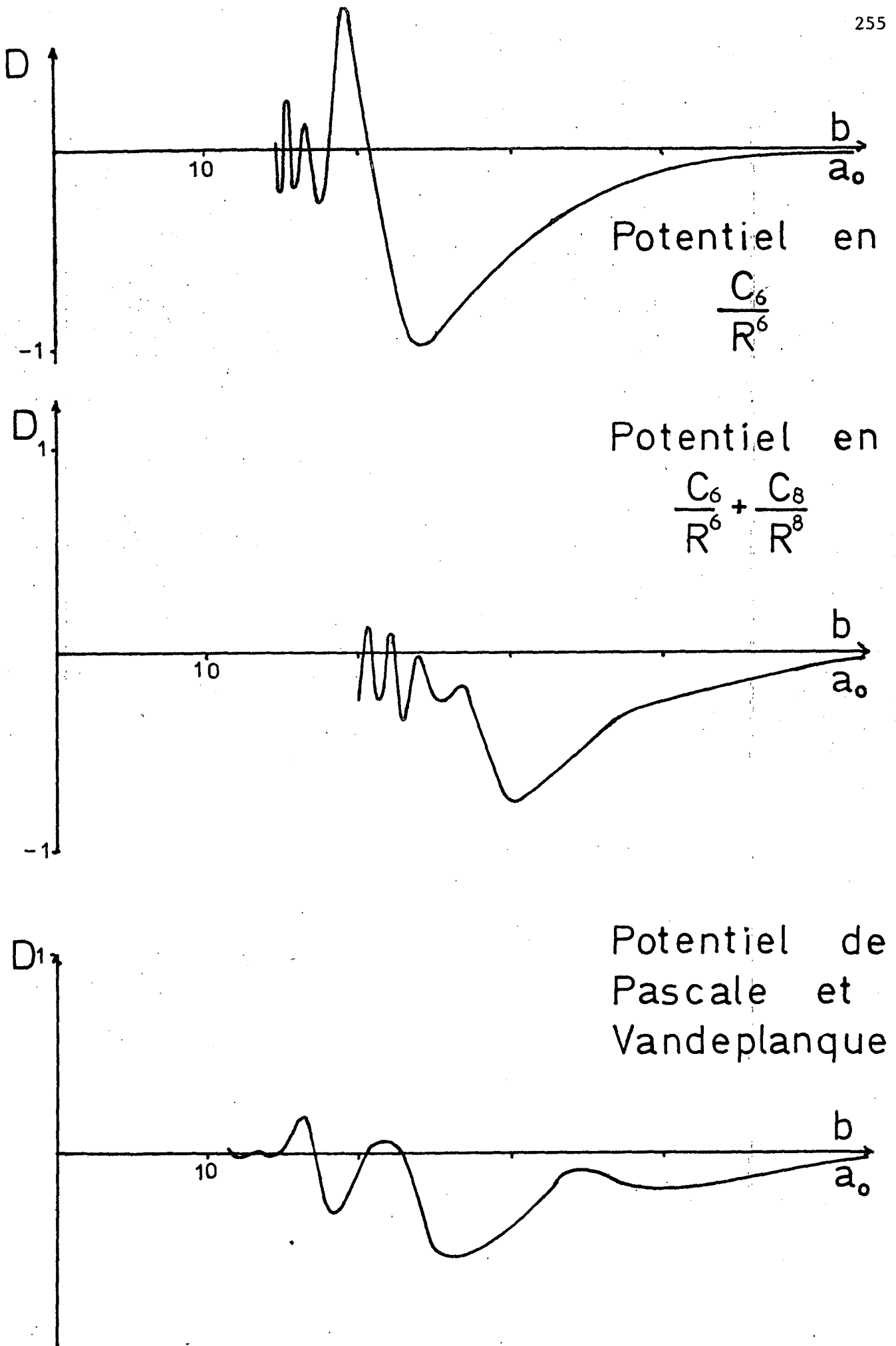


Figure VI - 8

| | b_1 (a_0) | σ_1 ($100 a_0^2$) | σ_2 ($100 a_0^2$) | σ_3 ($100 a_0^2$) | σ_4 ($100 a_0^2$) | σ_b ($100 a_0^2$) | $\frac{S}{W}$ |
|---------------------|--------------------|-------------------------------|-------------------------------|-------------------------------|-------------------------------|-------------------------------|---------------|
| HELIUM | | | | | | | |
| Expérience | | 17,6±2,5 | 13,6±0,9 | 17,8±3,3 | | 14,6±1,7 | + 0,11 |
| C_6/R^6 | 6,25 | 3 | 5 | 5 | 4 | 9 | - 0,34 |
| $C_6/R^6 + C_8/R^8$ | 15 | 11 | 13 | 14 | 12 | 13 | - 0,27 |
| P. et V. | 7 | 20 | 17 | 23 | 18 | 16 | + 0,28 |
| NEON | | | | | | | |
| Expérience | | 16,4±2,6 | 13,0±1,9 | 16,0±2,2 | | 14,3±1,2 | - 0,14 |
| C_6/R^6 | 8 | 6 | 8 | 9 | 7 | 12 | - 0,34 |
| $C_6/R^6 + C_8/R^8$ | 15 | 15 | 19 | 20 | 17 | 19 | - 0,29 |
| P. et V. | 12 | 34 | 32 | 41 | 35 | 24 | + 0,12 |
| ARGON | | | | | | | |
| Expérience | | 20,8±2,6 | 24,7±3,9 | 26,9±4,8 | | 37,5±3,8 | - 0,31 |
| C_6/R^6 | 11 | 11 | 16 | 16 | 13 | 29 | - 0,34 |
| $C_6/R^6 + C_8/R^8$ | 20 | 25 | 31 | 32 | 28 | 34 | - 0,29 |
| P. et V. | 12 | 31 | 30 | 30 | 31 | 30 | - 0,27 |
| KRYPTON | | | | | | | |
| Expérience | | 31,4±2,4 | 35,2±5,3 | 39,6±6,8 | | 41,9±4,4 | - 0,27 |
| C_6/R^6 | 12 | 13 | 19 | 20 | 16 | 35 | - 0,34 |
| $C_6/R^6 + C_8/R^8$ | 20 | 28 | 36 | 38 | 32 | 41 | - 0,29 |
| P. et V. | 15 | 36 | 36 | 38 | 35 | 37 | - 0,26 |
| XENON | | | | | | | |
| Expérience | | 48,6±8,5 | 49,3±5,0 | 51,8±6,5 | | 43,8±4,0 | - 0,31 |
| C_6/R^6 | 13,5 | 16 | 24 | 25 | 20 | 43 | - 0,34 |
| $C_6/R^6 + C_8/R^8$ | 21 | 33 | 42 | 45 | 38 | 50 | - 0,27 |
| P. et V. | 18 | 42 | 43 | 43 | 42 | 46 | - 0,26 |

est différente. En ce qui concerne l'élargissement et le déplacement de la transition, l'accord avec l'expérience est relativement bon ; les désaccords étant au plus de 25 %. Par contre les sections efficaces σ_k calculées sont trop petites d'un facteur deux environ. Ceci nous indique que le potentiel de Van der Waals en C_6/R^6 est trop peu anisotrope. Par contre la partie isotrope de ce potentiel a un ordre de grandeur correct. C'est bien ce que nous avons prévu en comparant les potentiels en C_6/R^6 et C_8/R^8 .

b) Potentiel en $C_6/R^6 + C_8/R^8$

Seul le cas des gaz rares lourds présente de l'intérêt. Nous obtenons des ordres de grandeur correct à *la fois* pour les sections efficaces σ_k et la section efficace d'élargissement σ_b , ce qui prouve que la partie anisotrope du potentiel est mieux représentée que par le potentiel de Van der Waals. Par ailleurs le rapport déplacement sur élargissement S/W calculé est en bon accord avec les valeurs expérimentales. De plus les variations relatives des sections efficaces σ_k sont bien celles données par l'expérience : $\sigma_1 < \sigma_2 < \sigma_3$. Les résultats des calculs reproduisent donc correctement l'ensemble des résultats expérimentaux.

c) Potentiel de Pascale et Vandepianque

Pour les gaz rares lourds, les ordres de grandeurs obtenus sont en bon accord avec l'expérience. Cependant ces potentiels donnent sensiblement la même valeur pour les sections efficaces σ_k , alors que les valeurs expérimentales sont quand même légèrement différentes.

Dans le cas de l'hélium, les résultats sont aussi satisfaisants. D'une part nous obtenons un rapport S/W positif et par ailleurs l'ordre relatif des sections σ_k est le bon :

$$\sigma_2 < \sigma_1 < \sigma_3$$

Cependant les valeurs obtenues sont légèrement trop grandes et le déplacement est deux fois trop important.

Pour le néon, la situation est différente, les sections efficaces calculées étant plus de deux fois trop grandes. Il semble que, pour le néon, le potentiel de Pascale et Vandepianque soit trop répulsif.

La conclusion de ces différents calculs sera la suivante :

- Pour les gaz rares lourds, le potentiel à longue portée en $C_6/R^6 + C_8/R^8$ suffit à expliquer la relaxation des multipôles d'ordre k , l'élargissement et le déplacement de la raie d'absorption à deux photons.
- Les potentiels calculés par Pascale et Vandepianque donnent des ordres de grandeur satisfaisants, excepté pour le néon. Dans ce dernier cas le potentiel répulsif semble être trop important.

Pour terminer ce chapitre, nous allons maintenant comparer nos résultats expérimentaux avec d'une part les mesures de J.F. Kielkopf et al⁽¹²⁾ sur l'élargissement et le déplacement de la transition $3P \rightarrow 4D$ et avec d'autre part des calculs théoriques du transfert $4D \rightarrow 4F$.

5°/ Comparaison avec les mesures du déplacement et de l'élargissement de la transition $3P \rightarrow 4D$

Dans la mesure où le rayon de l'état $4D$ est beaucoup plus grand que celui des états $3P$ et $3S$, les coefficients d'élargissement et de déplacement de la transition à deux photons $3S - 4D$ et de la transition à un photon $3P - 4D$ doivent être égaux en première approximation. Kielkopf et Knollenberg ont mesuré l'élargissement et le déplacement de la raie $3P - 4D$ en analysant le profil d'émission d'une lampe à sodium contenant du gaz rare. Ils obtiennent l'élargissement en déconvolant le profil de Voigt dû à l'effet Doppler et à l'élargissement par collision. Ils opèrent avec des pressions de gaz rare comprise entre 5 torr et 150 torr à une température de 500°K. Le tableau suivant compare leurs résultats aux nôtres (Ces auteurs n'ont pas mesuré l'élargissement de la raie $3P_{3/2} \rightarrow 4D$) :

| Élargissement des transitions | He | Ne | Ar | Kr | Xe |
|-------------------------------|----------------|----------------|----------------|----------------|----------------|
| $3P_{1/2} \rightarrow 4D$ | $21,6 \pm 1,2$ | $11,4 \pm 1,2$ | $25,8 \pm 1,8$ | $27,6 \pm 3,0$ | $36,6 \pm 3,6$ |
| $3S \rightarrow 4D$ | $24,6 \pm 2,9$ | $13,6 \pm 1,1$ | $30,5 \pm 3,3$ | $31,0 \pm 4,3$ | $31,0 \pm 2,5$ |

(L'unité est 10^{-16} MHz x cm³)

| Déplacement des transitions | He | Ne | Ar | Kr | Xe |
|-----------------------------|-----------------|------------------|----------------|-----------------|-----------------|
| $3P_{1/2} \rightarrow 4D$ | $1,2 \pm 0,9$ | $-5,4 \pm 0,6$ | $-7,8 \pm 0,9$ | $-9 \pm 1,2$ | $-11,4 \pm 0,9$ |
| $3P_{3/2} \rightarrow 4D$ | $1,8 \pm 0,9$ | $-6,0 \pm 0,6$ | $-9,0 \pm 0,9$ | $-11,4 \pm 1,2$ | $-11,7 \pm 0,9$ |
| $3S \rightarrow 4D$ | $2,65 \pm 0,37$ | $-1,94 \pm 0,34$ | $-9,4 \pm 1,2$ | $-7,4 \pm 0,5$ | $-9,6 \pm 0,5$ |

(L'unité est 10^{-16} MHz x cm³)

En ce qui concerne les largeurs, les deux mesures donnent des résultats comparables à mieux que 20 %. Pour les déplacements, l'accord est moins bon, ce qui prouve que le niveau 3P doit alors jouer un rôle plus important.

6°/ Calcul de la section efficace de transfert $4D \rightarrow 4F$

Récemment J.I. Gersten⁽¹³⁾ et R.E. Olson⁽¹⁴⁾ ont calculé la section efficace de transfert $4D \rightarrow 4F$. Nous donnons leurs résultats dans le tableau suivant :

| | He | Ne | Ar |
|------------------|---------------|--------------|--------------|
| Notre expérience | 470 ± 130 | 220 ± 50 | 130 ± 40 |
| J.I. GERSTEN | 540 | | 630 |
| R.E. OLSON | 140 | 250 | 470 |

(L'unité est a_0^2)

Les deux calculs donnent des résultats très différents, en particulier pour l'hélium. Olson trouve des sections efficaces qui augmentent lorsqu'on passe de l'hélium à l'argon, alors qu'expérimentalement on trouve l'inverse. Ce résultat expérimental se comprend bien lorsqu'on compare l'inverse de la durée de la collision $1/\tau_c$ à l'écart d'énergie $\Delta\omega$ entre les niveaux 4D et 4F. Pour un paramètre d'impact b , la durée de la collision est environ $\tau_c = b/v$. La probabilité de transition devient importante lorsque $\Delta\omega \times \tau = \frac{\Delta\omega_c \times b}{v}$ est de l'ordre de π . La section efficace est donc d'autant plus grande que la vitesse est grande, ce qui explique qu'on trouve expérimentalement un résultat nettement plus grand pour l'hélium.

Le calcul de Gersten donne pour l'hélium et l'argon des résultats sensiblement identiques. Ceci n'est pas étonnant car il semble qu'il néglige dans son calcul la différence d'énergie entre l'état 4D et l'état 4F. Finalement nous voyons que ces deux calculs ne sont pas vérifiés par l'expérience.

Pour conclure ce chapitre nous dirons simplement que nous nous sommes surtout intéressés à l'aspect qualitatif de la question. Il reste encore de nombreux problèmes théoriques pour interpréter quantitativement nos résultats. Les approximations que nous avons faites sont assez grossières et on pourrait améliorer la précision des calculs en moyennant sur les vitesses ou bien en traitant quantiquement le mouvement des atomes. Cependant le principal problème reste la connaissance des potentiels interatomiques. Les potentiels calculés par Pascale et Vandepanque sont déjà une bonne approximation et nous avons vu, qu'excepté pour le néon, ils donnaient des ordres de grandeurs corrects. Cependant nos expériences testent surtout le comportement à longue distance des potentiels. C'est pourquoi il serait très intéressant de calculer la section efficace de transfert entre les niveaux 4D et 4F qui dépend essentiellement du potentiel à courte portée.

C O N C L U S I O N

Notre travail présente un double aspect. D'une part nous avons développé les méthodes de spectroscopie multiphotonique sans élargissement Doppler et d'autre part nous avons appliqué ces techniques à l'étude des collisions sodium - gaz rares. Nous résumons ci-dessous les résultats obtenus dans ces deux domaines.

★ Spectroscopie multiphotonique

- Mise en évidence de la suppression de l'élargissement Doppler dans les transitions d'absorption à deux photons dans une onde stationnaire. Ces expériences, faites sur l'atome de sodium, ont permis de mesurer la structure fine du niveau 4D et la structure hyperfine du niveau $5S_{1/2}$.
- Application de cette technique à la mesure de structures fines, de structures hyperfines et de déplacements isotopiques dans l'atome de néon. Ces expériences, qui ne sont pas décrites en détail dans ce mémoire, ont fait l'objet de plusieurs publications auxquelles nous renvoyons le lecteur⁽¹⁾.
- Mise en évidence de la suppression de l'élargissement Doppler au cours de la transition à trois photons entre les états $3S_{1/2}$ et $3P_{1/2}$ de l'atome de sodium.

- Mesure de la structure hyperfine de l'état $4D_{3/2}$ du sodium. Dans cette expérience la mesure du taux de polarisation de la lumière de fluorescence après excitation à deux photons permet de déduire une valeur de la structure hyperfine *bien que celle-ci soit inférieure à la largeur naturelle*. Ceci nous montre tout l'intérêt qu'il peut y avoir à combiner l'excitation à deux photons avec des méthodes de spectroscopie plus classiques.

★ Etude des collisions sodium - gaz rares

- Mesure de l'élargissement et du déplacement des transitions à deux photons $3S - 5S$ et $3S - 4D$ dans l'atome de sodium.
- Etude de la relaxation à l'intérieur du niveau $4D$. Le résultat le plus original de cette étude concerne la mesure du transfert d'alignement entre les niveaux de structure fine $4D_{3/2}$ et $4D_{5/2}$; les gaz rares légers (He, Ne) provoquent un transfert d'alignement alors que nous n'avons rien observé pour les gaz rares lourds (Ar, Kr, Xe).
- Interprétation théorique et calcul des sections efficaces. Les principales approximations sont les suivantes : trajectoires rectilignes, structures fines et hyperfines très petites devant l'inverse du temps de collision, réduction de la base utilisée aux seuls états atomiques $|4D, LM\rangle$. L'intérêt de ces calculs a été principalement de tester les potentiels calculés par Pascale et Vandeplanque.

Ces quelques résultats illustrent clairement les multiples facettes de l'excitation à deux photons sans élargissement Doppler. Les possibilités de cette méthode sont très vastes. Du point de vue de la spectroscopie, il existe un grand nombre de transitions à deux photons qu'il est possible d'observer en utilisant le matériel dont on dispose actuellement. Par exemple, l'étude des états excités de l'hydrogène et de l'hélium à partir de leurs états métastables est un sujet plein de promesses. Du point de vue des collisions la méthode que nous utilisons est très puissante car nous avons pu mesurer un grand nombre de sections efficaces dans un laps de temps relativement court. Une extension évidente de ces expériences est l'étude des

propriétés collisionnelles des niveaux de Rydberg.

Il est clair que la spectroscopie d'absorption multiphotonique sans élargissement Doppler va entrer maintenant dans une nouvelle phase. Après la période euphorique des premières années où les expériences de démonstration prenaient le pas sur l'intérêt spectroscopique, nous devons songer maintenant à nos expériences en fonction de leur possibilité spectroscopique. Cette seconde phase est peut-être moins enthousiasmante, il n'est pas sûr qu'elle soit moins fructueuse...

A P P E N D I C E A

PROBABILITE D'ABSORPTION A DEUX PHOTONSDANS LE CAS D'UNE ONDE NON MONOCHROMATIQUE

Nous calculons dans cet appendice la probabilité d'absorption à deux photons lorsque l'atome est soumis à une onde non monochromatique. Les hypothèses générales du calcul ont été exposées au chapitre I (II - § 1°). Nous les rappelons brièvement.

Description du champ électromagnétique

Nous considérons un atome interagissant avec une onde électromagnétique de polarisation $\vec{\epsilon}$. Dans son référentiel propre, l'atome voit le champ électrique $\vec{E}(t)$. En utilisant les conventions habituelles ⁽¹⁾, nous faisons apparaître la distribution spectrale $E(\omega)$:

$$\vec{E}(t) = \vec{\epsilon} \int_0^{+\infty} d\omega E(\omega) e^{+i\omega t} + \vec{\epsilon}^* \int_0^{+\infty} d\omega E^*(\omega) e^{-i\omega t} \quad A-1$$

Nous faisons sur le champ électrique $\vec{E}(t)$ les hypothèses suivantes :

- Le champ électrique $\vec{E}(t)$ est nul sauf pendant un intervalle de temps fini ΔT compris entre les instants T_1 et T_2 .
- La fonction $E(\omega)$ est une fonction centrée en ω_L de largeur $\Delta\omega_L$. Nous supposons que la largeur $\Delta\omega_L$ est telle que les transitions à un photon sont interdites, c'est-à-dire que l'on doit avoir :

$$\Delta\omega_L \ll |\Delta\omega_r| \quad \text{A-2}$$

où $\Delta\omega_r$ est le défaut d'énergie défini au chapitre I (équation I-7).

Représentation d'interaction

En absence de champ électromagnétique, l'atome est soumis au hamiltonien H_1 :

$$H_1 = H_0 - i \frac{\Gamma}{2} \quad \text{A-3}$$

H_0 est le hamiltonien de l'atome en absence d'émission spontanée, et l'opérateur Γ permet de tenir compte de l'émission spontanée. Nous supposons qu'initialement l'atome est dans l'état fondamental $|g\rangle$. Nous choisissons l'énergie de cet état comme zéro d'énergie. Dans ces conditions l'énergie d'un état excité $|e\rangle$ s'écrit $\hbar(\omega_e - \frac{i\Gamma_e}{2})$.

Pour faire le calcul nous allons nous placer en représentation d'interaction, c'est-à-dire qu'un état $|\psi\rangle$ et un opérateur X sont remplacés par les opérateurs $|\tilde{\psi}\rangle$ et \tilde{X} :

$$\begin{aligned} |\tilde{\psi}(t)\rangle &= e^{i H_1 t/\hbar} |\psi(t)\rangle \\ \tilde{X}(t) &= e^{i H_1 t/\hbar} X e^{-i H_1^+ t/\hbar} \end{aligned} \quad \text{A-4}$$

Ces définitions ont été choisies de manière telle qu'en absence de champ

électromagnétique l'état $|\tilde{\psi}(t)\rangle$ ou la matrice densité $\tilde{\rho}(t)$ n'évolue pas.

En présence de champ électromagnétique, le hamiltonien atomique s'écrit à l'approximation dipolaire électrique :

$$H = H_1 - \vec{D} \cdot \vec{E}(t) \quad \text{A-5}$$

\vec{D} étant l'opérateur dipolaire électrique. L'équation d'évolution de $|\tilde{\psi}(t)\rangle$ s'écrit alors :

$$\frac{d}{dt} |\tilde{\psi}(t)\rangle = \frac{i}{\hbar} e^{i H_1 t/\hbar} \vec{D} \cdot \vec{E}(t) e^{-i H_1 t/\hbar} |\tilde{\psi}(t)\rangle \quad \text{A-6}$$

Le hamiltonien H_1 étant non hermétique, l'opérateur apparaissant dans cette équation d'évolution est différent de l'opérateur $\vec{D} \cdot \vec{E}(t)$.

Calcul de l'état $|\psi(t)\rangle$ du système

Nous faisons un calcul de perturbation au second ordre. Dans ce calcul la population de l'état fondamental reste égale à 1 et les états excités se vident avec une probabilité Γ . Ce type de calcul permet d'obtenir facilement les probabilités d'absorption à l'ordre le plus bas. Explicitons la perturbation à laquelle est soumis l'atome :

$$\vec{D} \cdot \vec{E}(t) = D \int_0^{+\infty} E(\omega) e^{i\omega t} d\omega + D^+ \int_0^{\infty} E^*(\omega) e^{-i\omega t} d\omega \quad \text{A-7}$$

où nous avons posé :

$$D = \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} \quad \text{A-8}$$

Dans le calcul de perturbation nous faisons l'approximation de l'onde tour-nante. Nous ne conservons dans l'expression A-6 que les termes de fréquences négatives, c'est-à-dire ceux qui correspondent à l'absorption d'un photon. On obtient alors, compte tenu que $e^{-i H_1 t/\hbar} |g\rangle = |g\rangle$:

$$\begin{aligned}
|\tilde{\psi}(t)\rangle &= |g\rangle + \frac{i}{\hbar} \int_{T_1}^t dt_1 \int_0^{+\infty} d\omega_1 E^*(\omega_1) e^{-i\omega_1 t_1} e^{i H_1 t_1 / \hbar} D^+ |g\rangle \\
&\quad - \frac{1}{\hbar^2} \int_{T_1}^t dt_2 \int_{T_1}^{t_2} dt_3 \iint_0^{+\infty} d\omega_2 d\omega_3 E^*(\omega_2) E^*(\omega_3) e^{-i\omega_2 t_2} e^{-i\omega_3 t_3} \\
&\quad \times e^{i H_1 t_2 / \hbar} D^+ e^{-i H_1 t_2 / \hbar} e^{i H_1 t_3 / \hbar} D^+ |g\rangle \quad \text{A-9}
\end{aligned}$$

Nous faisons maintenant apparaître l'opérateur transition à deux photons. Nous explicitons pour cela l'intégrale sur t_3 en posant : $u = t_2 - t_3$. On a :

$$\begin{aligned}
\int_{T_1}^{t_2} dt_3 e^{-i\omega_3 t_3} e^{i H_1 t_2 / \hbar} D^+ e^{-i H_1 (t_2 - t_3) / \hbar} D^+ |g\rangle &= \\
\int_0^{T_1} du e^{-i\omega_3 t_2} e^{i H_1 t_2 / \hbar} D^+ e^{i(\omega - \frac{H_1}{\hbar})u} D^+ |g\rangle &\quad \text{A-10}
\end{aligned}$$

L'existence d'un terme de relaxation dans H_1 nous permet d'étendre l'intégration de T_1 à $+\infty$. On obtient alors :

$$\begin{aligned}
\int_{T_1}^{t_2} dt_3 e^{-i\omega_3 t_3} e^{i H_1 t_2 / \hbar} D^+ e^{-i H_1 (t_2 - t_3) / \hbar} D^+ |g\rangle &= \\
-i \hbar e^{-i\omega_3 t_2} e^{i H_1 t_2 / \hbar} D^+ \frac{1}{H_1 - \hbar\omega} D^+ |g\rangle &\quad \text{A-11}
\end{aligned}$$

Vu les hypothèses faites sur le champ électrique (condition A-2) nous pouvons faire apparaître l'opérateur transition à deux photons :

$$D^+ \frac{1}{H_1 - \hbar\omega} D^+ \approx D^+ \frac{1}{H_0 - \hbar\omega_L} D^+ = Q \frac{S^+}{\epsilon\epsilon} \quad \text{A-12}$$

Nous obtenons finalement l'état $|\psi(t)\rangle$ à partir de l'état $|\tilde{\psi}(t)\rangle$:

$$|\psi(t)\rangle = e^{-i H_1 t / \hbar} |\tilde{\psi}(t)\rangle \quad \text{A-13}$$

Soit :

$$\begin{aligned}
 |\psi(t)\rangle &= |g\rangle + \frac{i}{\hbar} \int_{T_1}^t dt_1 \int_0^\infty d\omega_1 E^*(\omega_1) e^{-i\omega_1 t_1} e^{-iH_1(t-t_1)/\hbar} D^+ |g\rangle \\
 &+ \frac{i}{\hbar} \int_{T_1}^t dt_2 \iint_0^\infty d\omega_2 d\omega_3 E^*(\omega_2) E^*(\omega_3) e^{-i(\omega_2+\omega_3)t_2} e^{-iH_1(t-t_2)/\hbar} \\
 &\quad \times Q_{\epsilon\epsilon}^S |g\rangle
 \end{aligned}
 \tag{A-14}$$

Calcul de la valeur moyenne du dipole électrique

Pour obtenir l'énergie absorbée par l'atome nous calculons le travail du champ électrique sur le dipole induit. Compte tenu des notations complexes que nous utilisons, ce travail W s'écrit :

$$W = \int_{T_1}^{T_2} dt \vec{E}(t) \cdot \frac{d}{dt} \langle \psi(t) | \vec{D} | \psi(t) \rangle
 \tag{A-15}$$

Soit en tenant compte de l'expression de $E(t)$ (A-1) :

$$W = \int_{T_1}^{T_2} dt \int_0^\infty d\omega_4 [E(\omega_4) e^{+i\omega_4 t} \frac{d}{dt} \langle \psi(t) | D | \psi(t) \rangle + E^*(\omega_4) e^{-i\omega_4 t} \frac{d}{dt} \langle \psi(t) | D^+ | \psi(t) \rangle]
 \tag{A-16}$$

ou :

$$W = 2 \text{ Réel} \int_{T_1}^{T_2} dt \int_0^\infty d\omega_4 E(\omega_4) e^{+i\omega_4 t} \frac{d}{dt} \langle \psi(t) | D | \psi(t) \rangle
 \tag{A-17}$$

Il nous faut donc calculer maintenant l'expression de $\langle \psi(t) | D | \psi(t) \rangle$. Celle-ci s'obtient facilement à partir de l'expression de $|\psi(t)\rangle$ (A-14). On a :

$$\begin{aligned}
 \langle \psi(t) | D | \psi(t) \rangle &= \frac{1}{\hbar^2} \iint_{T_1}^t dt_1 dt_2 \iiint_0^\infty d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3 \times \\
 &[E(\omega_1) E^*(\omega_2) E^*(\omega_3) e^{+i(\omega_1 t_1 - \omega_2 t_2 - \omega_3 t_2)} \langle g | D e^{+iH_1^+(t-t_1)/\hbar} D e^{-iH_1(t-t_2)/\hbar} Q_{\epsilon\epsilon}^S |g\rangle \\
 &+ E^*(\omega_1) E(\omega_2) E(\omega_3) e^{-i(\omega_1 t_1 - \omega_2 t_2 - \omega_3 t_2)} \langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S e^{+iH_1^+(t-t_2)/\hbar} D e^{-iH_1(t-t_1)/\hbar} D^+ |g\rangle]
 \end{aligned}
 \tag{A-18}$$

Comme précédemment nous pouvons faire apparaître l'opérateur transition à deux photons. Il faut pour cela expliciter l'intégrale sur t_1 . On a par exemple pour le premier terme de l'expression A-18, en posant $v = t - t_1$:

$$\int_{T_1}^t dt_1 e^{+i\omega_1 t_1} \langle g | D e^{+iH_1^+(t-t_1)/\hbar} D e^{-iH_1(t-t_2)/\hbar} Q_{\epsilon\epsilon}^{S+} | g \rangle =$$

$$\int_0^{T_1} dv e^{i\omega_1 t} \langle g | D e^{i(H_1^+/\hbar - \omega_1)v} D e^{-iH_1(t-t_2)/\hbar} Q_{\epsilon\epsilon}^{S+} | g \rangle \quad \text{A-19}$$

Compte tenu de la relaxation nous pouvons étendre l'intégration de T_1 à $+\infty$. On a alors :

$$\int_{T_1}^t dt_1 e^{+i\omega_1 t_1} \langle g | D e^{+iH_1^+(t-t_1)/\hbar} D e^{-iH_1(t-t_2)/\hbar} Q_{\epsilon\epsilon}^{S+} | g \rangle =$$

$$+ \frac{1}{i\hbar} e^{i\omega_1 t} \langle g | D \frac{1}{H_1^+ - \hbar\omega_1} D e^{-iH_1(t-t_2)/\hbar} Q_{\epsilon\epsilon}^{S+} | g \rangle \quad \text{A-20}$$

L'opérateur transition à deux photons apparaît à nouveau :

$$D \frac{1}{H_1^+ - \hbar\omega_1} D \approx D \frac{1}{H_0 - \hbar\omega_L} D = Q_{\epsilon\epsilon}^S \quad \text{A-21}$$

Le calcul du deuxième terme de l'expression A-18 est analogue, si ce n'est que c'est l'opérateur $Q_{\epsilon\epsilon}^{*}$ qui apparaît :

$$Q_{\epsilon\epsilon}^{*} = D \frac{1}{H_0 - \hbar\omega_L} D^+ \quad \text{A-22}$$

Finalement on obtient pour la valeur moyenne du dipole électrique :

$$\langle \psi(t) | D | \psi(t) \rangle = + \frac{i}{\hbar} \int_{T_1}^t dt_2 \iiint_0^\infty d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3 \times$$

$$[E(\omega_1) E^*(\omega_2) E^*(\omega_3) e^{i(\omega_1 t_1 - \omega_2 t_2 - \omega_3 t_2)} \langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S e^{-iH_1(t-t_2)/\hbar} Q_{\epsilon\epsilon}^{S+} | g \rangle$$

$$- E^*(\omega_1) E(\omega_2) E(\omega_3) e^{-i(\omega_1 t_1 - \omega_2 t_2 - \omega_3 t_2)} \langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S e^{+iH_1^+(t-t_2)/\hbar} Q_{\epsilon\epsilon}^{*} | g \rangle]$$

La dépendance temporelle de $\langle \psi(t) | D | \psi(t) \rangle$ apparaît simplement lorsqu'on fait le changement de variable : $\tau = t - t_2$. On obtient (nous utilisons une fois encore l'existence de la relaxation pour étendre l'intégration de T_1 à $+\infty$) :

$$\begin{aligned} \langle \psi(t) | D | \psi(t) \rangle &= + \frac{i}{\hbar} \int_0^\infty d\tau \iiint_0^\infty d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3 \times \\ & [E(\omega_1) E^*(\omega_2) E^*(\omega_3) e^{i(\omega_1 - \omega_2 - \omega_3)t} e^{i(\omega_2 + \omega_3)\tau} \langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S e^{-iH_1 \tau/\hbar} Q_{\epsilon\epsilon}^{S+} | g \rangle \\ & - E^*(\omega_1) E(\omega_2) E(\omega_3) e^{-i(\omega_1 - \omega_2 - \omega_3)t} e^{-i(\omega_2 + \omega_3)\tau} \langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S e^{+iH_1 \tau/\hbar} Q_{\epsilon\epsilon}^{S+} | g \rangle] \end{aligned}$$

A-24

Nous avons supposé initialement que la distribution $E(\omega)$ était centrée en ω_L avec une largeur $\Delta\omega_L$ assez petite (condition A-2). Dans ces conditions on a :

$$\omega_1 \approx \omega_2 \approx \omega_3 \approx \omega_L$$

Nous voyons donc que $\langle \psi(t) | D | \psi(t) \rangle$ est la somme de deux termes, l'un évoluant avec une fréquence négative, l'autre évoluant avec une fréquence positive. Nous sommes maintenant en mesure de calculer l'énergie totale absorbée par l'atome entre les instants T_1 et T_2 .

Calcul de l'énergie absorbée par l'atome

Nous partons pour cela de l'expression A-17. Nous voyons d'abord que la composante de $\langle \psi(t) | D | \psi(t) \rangle$ évoluant à une fréquence positive donne une contribution se moyennant à zéro lorsqu'on intègre sur le temps. En se limitant donc à la composante évoluant à une fréquence négative, l'expression de l'énergie absorbée W s'écrit :

$$\begin{aligned} W &= \frac{2}{\hbar} \text{Réel} \int_{T_1}^{T_2} dt \iiint_0^\infty d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3 d\omega_4 (\omega_2 + \omega_3 - \omega_1) e^{i(\omega_1 + \omega_4 - \omega_2 - \omega_3)t} \\ & E(\omega_1) E^*(\omega_2) E^*(\omega_3) E(\omega_4) \int_0^\infty d\tau e^{i(\omega_2 + \omega_3)\tau} \langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S e^{-iH_1 \tau/\hbar} Q_{\epsilon\epsilon}^{S+} | g \rangle \end{aligned}$$

A-25

Compte tenu des hypothèses faites sur la distribution $E(\omega)$, nous avons :

$$\omega_2 + \omega_3 - \omega_1 = \omega_L$$

D'autre part, comme nous avons supposé que le champ électromagnétique est nul avant l'instant T_1 et après l'instant T_2 , nous pouvons étendre l'intégration sur le temps de $-\infty$ à $+\infty$. On a alors :

$$\int_{-\infty}^{+\infty} e^{i(\omega_1 + \omega_4 - \omega_2 - \omega_3)t} dt = 2\pi \delta(\omega_1 + \omega_4 - \omega_2 - \omega_3) \quad \text{A-26}$$

Nous introduisons alors les variables Ω et Ω' et la quantité $B(\Omega)$:

$$\Omega = \omega_1 + \omega_4$$

$$\Omega' = \omega_2 + \omega_3 \quad \text{A-27}$$

$$B(\Omega) = \int_0^{\Omega} d\omega E(\omega) E(\Omega - \omega) \quad \text{A-28}$$

L'expression de la puissance absorbée s'écrit alors :

$$W = \frac{4\pi \omega_L}{h} \text{ Réel} \int_0^{\infty} \int_0^{\infty} d\Omega d\Omega' B^*(\Omega') B(\Omega) \delta(\Omega - \Omega') \times \\ \int_0^{\infty} d\tau e^{+i\Omega'\tau} \langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S e^{-iH_1 \tau/\hbar} Q_{\epsilon\epsilon}^{S+} | g \rangle \quad \text{A-29}$$

Soit finalement, en intégrant sur Ω' et en utilisant la définition A-4 de l'opérateur $\tilde{X}(t)$:

$$W = \frac{4\pi \omega_L}{h} \text{ Réel} \int_0^{\infty} d\Omega |B(\Omega)|^2 \int_0^{\infty} d\tau e^{i\Omega\tau} \langle g | \tilde{Q}_{\epsilon\epsilon}^S(0) \tilde{Q}_{\epsilon\epsilon}^{S+}(-\tau) | g \rangle \quad \text{A-30}$$

L'énergie absorbée dépend en ce qui concerne l'atome de la fonction de corrélation de l'opérateur transition à deux photons et en ce qui concerne le champ électromagnétique de la fonction $B(\Omega)$. Dans le cas d'une onde monochromatique de fréquence ω_L , cette fonction $B(\Omega)$ est centrée en $2\omega_L$. L'énergie absorbée est alors proportionnelle à :

$$W \sim \text{R\u00e9el} \int_0^{\infty} d\tau e^{2i\omega_L \tau} \langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S(0) Q_{\epsilon\epsilon}^{S+}(-\tau) | g \rangle \quad \text{A-31}$$

Cette fonction de corr\u00e9lation se calcule facilement :

$$\begin{aligned} \text{R\u00e9el} \int_0^{\infty} d\tau e^{i\Omega\tau} \langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S e^{-iH_1 \tau/\hbar} Q_{\epsilon\epsilon}^{S+} | g \rangle = \\ \text{R\u00e9el} \sum_e \int_0^{\infty} d\tau e^{i\Omega\tau} \langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S e^{-iH_1 \tau/\hbar} | e \rangle \langle e | Q_{\epsilon\epsilon}^{S+} | g \rangle \end{aligned}$$

L'\u00e9tat $|e\rangle$ \u00e9tant vecteur propre de H_1 avec la valeur propre $\hbar(\omega_e - i\frac{\Gamma_e}{2})$, cette expression s'\u00e9crit :

$$\text{R\u00e9el} \sum_e \int_0^{\infty} d\tau e^{\tau[i(\Omega-\omega_e) - \frac{\Gamma_e}{2}]} |\langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S | e \rangle|^2$$

On obtient finalement :

$$W = \frac{4\pi \omega_L}{h} \int_0^{\infty} d\Omega |B(\Omega)|^2 \sum_e \frac{\Gamma_e}{(\Omega-\omega_e)^2 + \frac{\Gamma_e^2}{4}} |\langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S | e \rangle|^2 \quad \text{A-32}$$

Pour une transition vers un niveau excit\u00e9 e la forme de raie est lorentzienne.

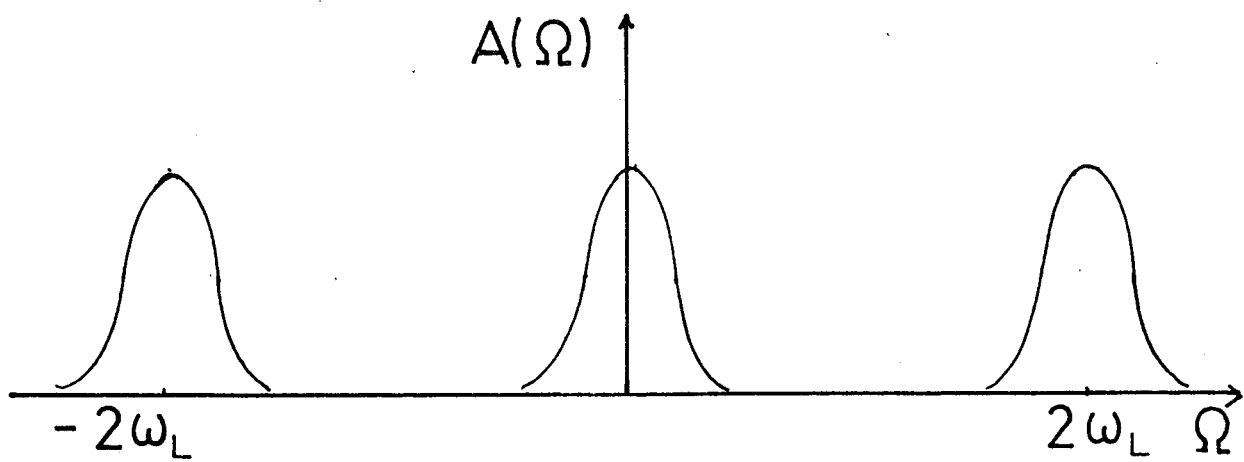
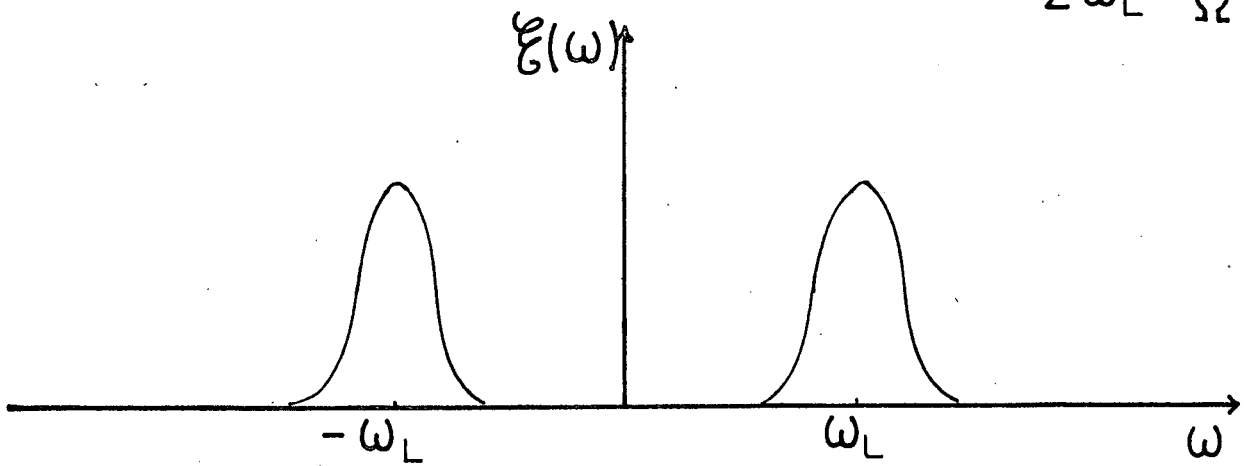
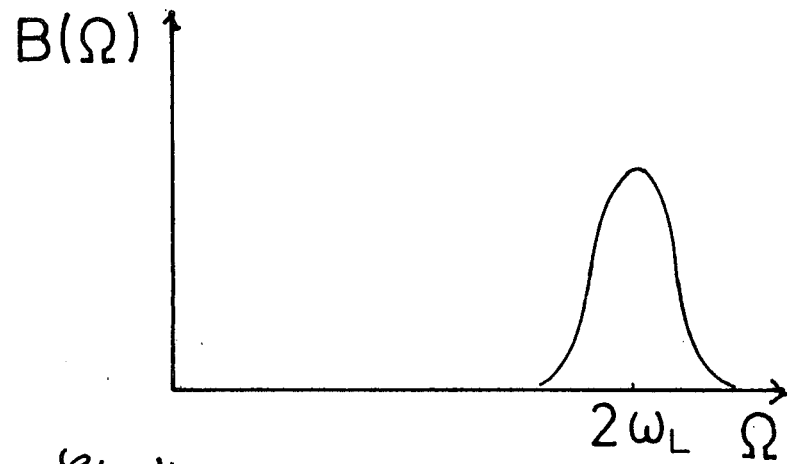
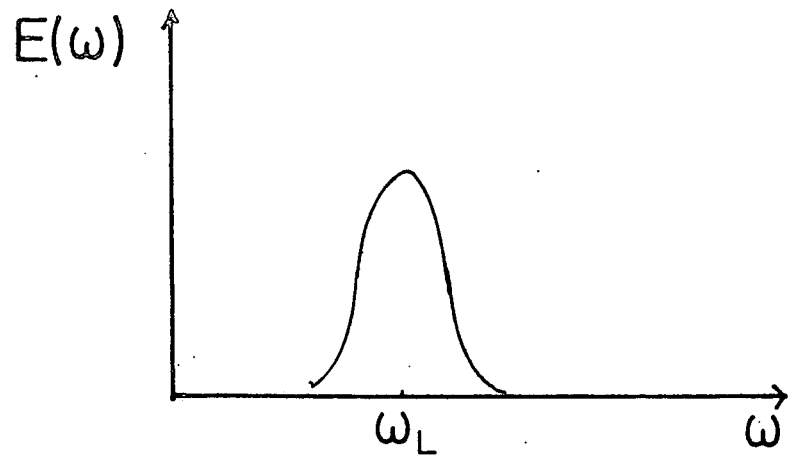
Cas d'une polarisation r\u00e9elle

Dans le cas d'une polarisation $\vec{\epsilon}$ r\u00e9elle, l'expression de l'\u00e9nergie absorb\u00e9e par l'atome peut s'exprimer plus directement en fonction du champ \u00e9lectrique $\vec{E}(t)$. Pour cela nous posons :

$$\vec{E}(t) = E(t) \vec{\epsilon} = \vec{\epsilon} \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} \mathfrak{E}(\omega) e^{+i\omega t} d\omega \quad \text{A-33}$$

$\mathfrak{E}(\omega)$ est la transform\u00e9e de Fourier de la fonction $E(t)$. Elle s'exprime directement en fonction de la distribution $E(\omega)$ introduite au d\u00e9but de cette annexe (A-1) :

$$\begin{aligned} \mathfrak{E}(\omega) &= E(\omega) & \text{si : } & \omega > 0 \\ \mathfrak{E}(\omega) &= E^*(-\omega) & \text{si : } & \omega < 0 \end{aligned} \quad \text{A-34}$$



Nous avons déjà supposé que $E(\omega)$ était une fonction centrée en ω_L de largeur $\Delta\omega_L$; $\mathfrak{E}(\omega)$ comporte donc deux pics centrés en $-\omega_L$ et $+\omega_L$. Nous introduisons maintenant la fonction $A(\Omega)$ définie par :

$$A(\Omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathfrak{E}(\omega) \mathfrak{E}(\Omega-\omega) d\omega \quad \text{A-35}$$

Nous allons comparer cette fonction $A(\Omega)$ à la fonction $B(\Omega)$ définie précédemment. La distribution $E(\omega)$ étant centrée en ω_L , la fonction $B(\Omega)$ est centrée en $2\omega_L$. Par contre, la distribution $\mathfrak{E}(\omega)$ comportant deux pics centrés en $\pm\omega_L$, la fonction $A(\Omega)$ en comporte trois centrés en $-2\omega_L$, 0 et $+2\omega_L$. Compte tenu des égalités A-34, nous avons au voisinage de $\Omega = 2\omega_L$:

$$A(\Omega) = B(\Omega)$$

Par ailleurs nous venons de voir que l'intégrale de la fonction de corrélation

$$\int_0^{\infty} d\tau e^{i\Omega\tau} \langle g | Q_{\mathcal{E}\mathcal{E}}^S(o) Q_{\mathcal{E}\mathcal{E}}^{S+}(-\tau) | g \rangle$$

était une fonction centrée autour de la fréquence atomique ω_e . Nous faisons donc une erreur négligeable en remplaçant dans l'expression de W (A-30) la fonction $B(\Omega)$ par la fonction $A(\Omega)$. En effet ces deux fonctions ne diffèrent sur l'intervalle $[0, +\infty]$ qu'au voisinage de zéro, c'est-à-dire pour des valeurs de Ω pour lesquelles l'intégrale de la fonction de corrélation est fortement antirésonnante. On peut donc finalement écrire :

$$W = \frac{4\pi \omega_L}{\hbar} \text{ Réel} \int_0^{\infty} d\Omega |A(\Omega)|^2 \int_0^{\infty} d\tau e^{i\Omega\tau} \langle g | Q_{\mathcal{E}\mathcal{E}}^S(o) Q_{\mathcal{E}\mathcal{E}}^{S+}(-\tau) | g \rangle \quad \text{A-36}$$

L'intérêt de cette expression est que $A(\Omega)$ s'exprime simplement à partir du champ électrique $E(t)$; on obtient à partir de A-33 et A-35 :

$$A(\Omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} E(t)^2 e^{-i\Omega t} dt \quad \text{A-37}$$

Nous voyons que $A(\Omega)$ est la transformée de Fourier du carré du champ électrique $E(t)^2$. C'est sous cette forme simple que nous utilisons ces résultats au premier chapitre.

A P P E N D I C E B

COMPLÉMENTS SUR LE CALCUL DE LA FORME DE RAIE

Dans cet appendice nous présentons d'abord deux compléments sur le calcul de l'élargissement dû au temps de traversée du faisceau que nous avons fait au premier chapitre (§ III) : nous calculons d'abord l'intégrale sur les vitesses, puis nous examinons l'influence des atomes de faible vitesse. Dans la deuxième partie de cet appendice nous examinons ensuite l'effet de la largeur du mode du laser sur la forme de raie.

I - ELARGISSEMENT DU AU TEMPS DE TRAVERSEE DU FAISCEAU

1°/ Calcul de l'intégrale sur les vitesses

Au premier chapitre nous avons calculé la puissance P absorbée par la vapeur atomique. Avant l'intégration sur les vitesses, l'expression de P est donnée par l'expression (I-39) :

$$P = \alpha \int_0^{\infty} e^{-\frac{MV_r^2}{2kT}} dV_r \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \frac{\Gamma_e}{(\Omega - \omega_{eg})^2 + \frac{1}{4} \Gamma_e^2} \exp - \frac{(\Omega - 2\omega_L)^2}{4V_r^2 / W_o^2} \quad (B-1)$$

Pour faire la somme sur les vitesses nous voyons que nous avons à évaluer l'intégrale I :

$$I = \int_0^{\infty} e^{-\frac{x^2}{\delta^2}} e^{-\frac{y^2}{x^2}} dx \quad (B-2)$$

Où nous avons posé : $\delta = \frac{1}{W_0} \left(\frac{2kT}{M} \right)^{1/2}$ $y = \frac{(\Omega - 2\omega_L)}{2}$ $x = \frac{V_r}{W_0}$ (B-3)

Nous développons en série de Fourier la deuxième exponentielle :

$$e^{-\frac{y^2}{x^2}} = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{x}{2\sqrt{\pi}} e^{-\frac{\omega^2 x^2}{4}} e^{-i\omega y} d\omega \quad (B-4)$$

L'intégrale sur la variable x se fait alors facilement :

$$I = \int_0^{\infty} e^{-\frac{x^2}{\delta^2}} dx \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{x}{2\sqrt{\pi}} e^{-\frac{\omega^2 x^2}{4}} e^{-i\omega y} d\omega \quad (B-5)$$

$$I = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{\sqrt{\pi}} \frac{e^{-i\omega y}}{\omega^2 + \frac{4}{\delta^2}} d\omega \quad (B-6)$$

Nous n'avons plus qu'à calculer la transformée de Fourier d'une lorentzienne :

$$I = \frac{\delta\sqrt{\pi}}{2} e^{-2\left|\frac{y}{\delta}\right|} \quad (B-7)$$

La puissance absolue s'écrit à partir de la formule (B-1) :

$$P = \frac{\alpha}{2} \left(\frac{2\pi kT}{M} \right)^{1/2} \int_{-\infty}^{+\infty} d\Omega \frac{\Gamma_e}{(\Omega - \omega_e)^2 + \frac{1}{4}\Gamma_e^2} e^{-\frac{|\Omega - 2\omega_L|}{\delta}} \quad (B-8)$$

Le profil d'absorption est donc le produit de convolution d'une lorentzienne de largeur Γ_e par une double exponentielle de largeur $\delta = \frac{V_r}{W_0}$, \bar{V}_r étant la vitesse quadratique moyenne radiale.

2°/ Influence des atomes de faible vitesse radiale

Comme nous l'avons déjà signalé, le calcul que nous avons fait au premier chapitre de la puissance absorbée par la vapeur atomique est inexact. Nous avons en effet surestimé l'énergie absorbée par les atomes qui restent longtemps dans le faisceau. Nous allons évaluer dans ce paragraphe l'importance de cette erreur.

Pour calculer la puissance P absorbée par la vapeur nous faisons

la somme de l'énergie $W(V_r, \rho)$ absorbée par tous les atomes qui traversent pendant le temps ΔT le faisceau laser. Or l'énergie $W(V_r, \rho)$ est l'énergie absorbée entre $t = -\infty$ et $t = +\infty$. Notre calcul n'est exact que pour les atomes assez rapides pour avoir le temps de traverser complètement le faisceau pendant l'intervalle de temps ΔT que nous considérons. Pour les atomes plus lents l'énergie $W(V_r, \rho)$ est supérieure à l'énergie réellement absorbée pendant le temps ΔT .

Nous pouvons estimer l'erreur que nous commettons. Pour qu'un atome puisse traverser le faisceau pendant le temps ΔT , il faut que sa vitesse soit supérieure à $\frac{W_0}{\Delta T}$. Nous pouvons calculer l'énergie ΔW absorbée par tous les atomes qui ont une vitesse inférieure à $\frac{W_0}{\Delta T}$, ce qui va nous donner l'ordre de grandeur de l'erreur que nous commettons.

Si P_e est la puissance absorbée exacte et P_c celle que nous avons calculée précédemment, nous avons :

$$P_c \times \Delta T - \Delta W < P_e \times \Delta T < P_c \times \Delta T \quad (\text{B-9})$$

Pour calculer ΔW il suffit de limiter l'intégrale sur les vitesses de $V_r = 0$ à $V_r = \frac{W_0}{\Delta T}$. Si ΔT est assez grand, nous aurons à intégrer sur des vitesses très petites. A la limite V_r égal à zéro, nous avons :

$$W(V_r, \rho) \sim \frac{1}{V_r}$$

Nous pouvons calculer W en limitant l'intégrale (B-1) à $V_r = \frac{W_0}{\Delta T}$.

A des facteurs de proportionnalité près, nous avons :

$$\Delta W \sim \int_0^{\frac{W_0}{\Delta T}} \frac{W_0}{\Delta T} V_r \times \Delta T f(V_r) W(V_r, \rho) dV_r$$

Soit :

$$\Delta W \sim \int_0^{\frac{W_0}{\Delta T}} \frac{W_0}{\Delta T} \Delta T \times V_r dV_r = \frac{1}{2} \frac{W_0^2}{\Delta T} \quad (\text{B-10})$$

Si nous faisons tendre ΔT vers l'infini, ΔW tend vers zéro. Les inégalités (B-9) montrent bien alors que l'erreur que nous faisons est négligeable.

II - INFLUENCE DE LA LARGEUR DE MODE DU LASER

Dans nos expériences les formes de raie que nous avons calculée au chapitre I sont en fait brouillée par la largeur du mode du laser. En effet les lasers que nous utilisons ne sont pas parfaitement monochromatiques, et la fréquence de la lumière émise fluctue autour d'une valeur moyenne. Ces fluctuations sont relativement lentes car elles sont principalement dues aux vibrations et aux instabilités mécaniques de la cavité laser. Dans ces conditions on peut considérer que le mode du laser, de fréquence ω_L et d'intensité E_0^2 constante, est très fin pendant une durée de vie atomique (quelques kHz), mais que la fréquence ω_L fluctue lentement (par rapport à une durée de vie atomique) autour d'une valeur moyenne $\bar{\omega}_L$. Le calcul que nous avons fait reste valable et il suffit de moyenner le résultat obtenu par la distribution de probabilité $\mathcal{P}(\omega_L)$ qui caractérise les fluctuations de ω_L . Pour pouvoir continuer le calcul nous devons nous donner à priori la fonction $\mathcal{P}(\omega_L)$. Nous allons choisir une distribution gaussienne. En effet l'amplitude des fluctuations de ω_L reste toujours limitée et ceci est relativement bien représenté par une gaussienne. Nous avons donc :

$$\mathcal{P}(\omega_L) = \frac{1}{\Delta\sqrt{\pi}} e^{-\frac{(\omega_L - \bar{\omega}_L)^2}{\Delta^2}} \quad (\text{B-11})$$

La largeur du mode du laser est donc caractérisée par le paramètre Δ . En reprenant la formule (B-1) la puissance absorbée s'écrit :

$$P = \frac{\alpha}{2\Delta} \left(\frac{2kT}{M} \right)^{1/2} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\Gamma_e}{(\Omega - \omega_{eg})^2 + \frac{1}{4} \Gamma_e^2} d\Omega \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-\frac{|\omega - 2\omega_L|}{\delta}} e^{-\frac{(\omega_L - \bar{\omega}_L)^2}{\Delta^2}} d\omega_L \quad (\text{B-12})$$

A priori le calcul de l'intégrale sur ω_L n'est pas simple. Comme nous l'avons vu au deuxième chapitre (§ II,4) nous travaillons le plus souvent dans des conditions expérimentales telles que l'élargissement dû au temps de traversée du faisceau δ est assez petit devant la largeur du mode du laser ("jitter") Δ . Dans ce cas on peut supposer que le produit de convolution déforme peu la gaussienne de largeur Δ et que l'on obtient finalement une gaussienne de largeur $(\Delta^2 + \delta^2)^{1/2}$. Ceci peut se justifier par un développement limité en fonction de $\frac{\delta}{\Delta}$.

Pour simplifier les notations, nous posons :

$$x = \omega_L - \frac{\Omega}{2} \quad x_0 = \bar{\omega}_L - \frac{\Omega}{2} \quad (\text{B-13})$$

Nous devons alors évaluer l'intégrale $B(x_0)$:

$$B(x_0) = \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-2 \frac{|x|}{\delta}} e^{-\frac{(x-x_0)^2}{\Delta^2}} dx \quad (\text{B-14})$$

Dans la mesure où δ est petit devant Δ , nous pouvons faire un développement limité de la gaussienne :

$$e^{-\frac{(x-x_0)^2}{\Delta^2}} \approx e^{-\frac{x_0^2}{\Delta^2}} \left[1 + \frac{2x_0 x}{\Delta^2} + \left(\frac{2x_0^2}{\Delta^4} - \frac{1}{\Delta^2} \right) x^2 + \dots \right] \quad (\text{B-15})$$

L'intégration est alors immédiate :

$$B(x_0) \approx \delta e^{-\frac{x_0^2}{\Delta^2}} \left[1 + \left(\frac{2x_0^2}{\Delta^2} - 1 \right) \frac{\delta^2}{2\Delta^2} + \dots \right] \quad (\text{B-16})$$

Nous pouvons ressommer ce développement sous forme d'exponentielle :

$$B(x_0) \approx \delta e^{-\frac{x_0^2}{\Delta^2}} x \left(1 - \frac{\delta^2}{2\Delta^2} \right) e^{+x_0^2 \frac{\delta^2}{\Delta^4}} \quad (\text{B-17})$$

Soit finalement :

$$B(x_0) \approx \delta \left(1 - \frac{\delta^2}{2\Delta^2} \right) e^{-\frac{x_0^2}{\Delta^2 + \delta^2}} \quad (\text{B-18})$$

L'intégrale sur ω_L est donc bien approximativement une gaussienne de largeur $(\Delta^2 + \delta^2)^{1/2}$. Finalement le profil d'absorption est donné par la formule approchée suivante :

$$P = \beta \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\Gamma_e}{(\Omega - \omega_{eg})^2 + \frac{1}{4} \Gamma_e^2} e^{-\frac{(\Omega - 2\omega_L)^2}{4(\Delta^2 + \delta^2)}} d\Omega \quad (\text{B-19})$$

La courbe d'absorption est alors un profil de Voigt. Cependant ce résultat est le fruit d'approximations très grossières. Nous avons supposé en

effet que le mode du laser avait un profil gaussien et que $\frac{\delta}{\Delta}$ était très petit devant 1. Le principal avantage est de nous ramener à un profil bien connu.

L'expression du coefficient β est la suivante :

$$\beta = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \frac{\hbar \bar{\omega}_L}{\Delta} \left(\frac{P_o}{\epsilon_o \hbar c S} \right)^2 N L W_o^2 |\langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S | e \rangle|^2 \quad (B-20)$$

Nous avons fait apparaître la section $S = \pi W_o^2$ du faisceau et la puissance P_o du laser :

$$P_o = \pi W_o^2 \epsilon_o c E_o^2$$

Il est alors intéressant de calculer exactement la valeur maximum P_M de la puissance absorbée. Si nous supposons que la largeur naturelle Γ_e est petite devant le "jitter" Δ du laser, l'intégrale (B-19) est immédiate :

$$P_M = 2\pi\beta$$

Nous pouvons exprimer P_M en fonction de la probabilité de transition $\Gamma_g(o)$ qui a été définie au premier chapitre (I-4). Nous avons :

$$P_M = \frac{\sqrt{\pi}}{2} \hbar \bar{\omega}_L N L S \left(\frac{\Gamma_e}{2\Delta} \right) \Gamma_g(o) \quad (B-21)$$

$$\Gamma_g(o) = \left(\frac{P_o}{\epsilon_o c \hbar S} \right)^2 |\langle g | Q_{\epsilon\epsilon}^S | e \rangle|^2 \frac{4}{\Gamma_e} \quad (B-22)$$

Nous voyons que la puissance absorbée est proportionnelle au carré de la puissance incidente, inversement proportionnelle à la section du faisceau et à la largeur Δ du mode du laser.

A P P E N D I C E C

 CALCUL DE L'INTENSITE ET DE LA POLARISATION

 DES RAIES DE FLUORESCENCE LORS DE L'EXCITATION A DEUX PHOTONS

 ENTRE LES NIVEAUX 3S ET 4D DE L'ATOME DE SODIUM

Nous présentons dans cet appendice le calcul de l'intensité des raies de fluorescence en appliquant le formalisme des opérateurs d'excitation et des opérateurs de détection ^[1]. Comme nous avons vu que la structure hyperfine était petite dans l'état excité par rapport à la largeur naturelle (cf. chapitre II) nous allons faire un premier calcul en négligeant le spin nucléaire. Ce calcul est valable dans notre cas bien que nous distinguons à l'excitation les deux niveaux de structure hyperfine de l'état fondamental $3S_{1/2}$. En effet la trace partielle par rapport aux variables nucléaires du projecteur $\sum_{m_g} |F_g m_g\rangle \langle F_g m_g|$ sur l'état hyperfin F_g reste isotrope. Dans ces conditions, lorsque la structure hyperfine dans l'état excité est strictement nulle, on peut faire le calcul des intensités et des taux de polarisation de la lumière de fluorescence en négligeant totalement le spin nucléaire. C'est ce que nous faisons dans la première partie de cet appendice. Nous reprendrons ensuite le problème en tenant compte de la structure hyperfine de l'état excité dans une deuxième partie.

I - CALCUL DE L'INTENSITE DES RAIES DE FLUORESCENCE EN ABSENCE DE SPIN NUCLEAIRE

Nous allons utiliser pour faire ce calcul le formalisme de la matrice densité. Ce calcul se décompose en trois étapes :

- Nous calculons d'abord la matrice de pompage déduite de l'équation (I-4) à résonance ($\delta\omega = 0$) :

$$\left(\frac{d\rho_e}{dt} \right)_p = \frac{4 n_1 n_2 \omega^2}{\epsilon_0^2 \Gamma_e} E \quad (C-1)$$

Où ^{*} :

$$E = e_{gQ} S_{\epsilon_1 \epsilon_2} \rho_g e_{gQ} S_{\epsilon_1 \epsilon_2}^+ \quad (C-2)$$

Nous appellerons par la suite E l'opérateur d'excitation. L'opérateur $e_{gQ} S_{\epsilon_1 \epsilon_2}$ est la restriction de l'opérateur transition à deux photons telle qu'elle a été définie au premier chapitre (formule I-11).

- Nous étudions ensuite l'évolution de la matrice densité dans l'état excité de manière à déterminer la matrice densité stationnaire ρ_e . Dans le cas simple où l'on n'excite qu'un seul état (absence de structure hyperfine) et où il n'y a pas de collisions nous avons :

$$\frac{d\rho_e}{dt} = \left(\frac{d\rho_e}{dt} \right)_p - \Gamma_e \rho_e \quad (C-3)$$

A l'état stationnaire la matrice densité s'écrit donc :

$$\rho_e = \frac{1}{\Gamma_e} \left(\frac{d\rho_e}{dt} \right)_p = \frac{4 n_1 n_2 \omega^2}{\epsilon_0^2 \Gamma_e^2} E \quad (C-4)$$

Nous étudions dans la deuxième partie de cette appendice le cas où l'on excite plusieurs niveaux et dans le chapitre V celui où l'on tient compte des collisions.

- La matrice densité dans l'état excité étant maintenant connue, l'intensité I des raies de fluorescence s'obtient immédiatement :

$$I \sim \text{Tr} \rho_e \mathcal{D}^+ \quad (C-5)$$

^{*} L'opérateur E est noté σ_e par Grynberg (2)

\mathcal{D} est l'opérateur de détection. Nous en redonnerons la définition dans la deuxième partie de ce paragraphe (§ I - 2°).

1°/ Calcul de l'opérateur d'excitation E

L'opérateur d'excitation E agit à l'intérieur du sous espace de l'espace de Liouville correspondant à l'état excité J_e . Il se décompose donc sur les opérateurs tensoriels irréductibles $J_e J_e T_Q^K$:

$$E = \sum_{K, Q} J_e J_e T_Q^K \quad (C-6)$$

Les coefficients $J_e J_e T_Q^K$ sont directement liés aux coefficients $J_e P_Q^K$ définis au chapitre V :

$$J_e P_Q^K = \frac{4 n_1 n_2 \omega^2}{\epsilon_0^2 \Gamma_e} J_e J_e T_Q^K \quad (C-7)$$

Le but de ce paragraphe est de calculer les coefficients $J_e J_e T_Q^K$. Ils s'obtiennent en projetant l'opérateur E sur l'opérateur $J_e J_e T_Q^K$; on a :

$$\text{Tr } T_Q^K T_{Q'}^{K'+} = \delta_{KK'} \delta_{QQ'} \quad (C-8)$$

D'où :

$$J_e J_e T_Q^K = \text{Tr } E J_e J_e T_Q^{K+} \quad (C-9)$$

Nous allons supposer que le niveau fondamental est non polarisé :

$$\rho_g = \frac{1}{2J_g + 1} I_d \quad (C-10)$$

Pour calculer l'opérateur d'excitation nous devons utiliser le développement (I-13) de l'opérateur transition à deux photons sur les opérateurs tensoriels irréductibles :

$$e_{\epsilon_1 \epsilon_2}^g Q^S = \sum_{k=0,2} \frac{\langle e J_e || Q^k || g J_g \rangle}{\sqrt{2k+1}} \sum_q a_q^k J_e J_g T_q^k \quad (C-11)$$

En appliquant la relation C-9, on obtient alors à partir de C-2, C-10 et C-11 :

$$J_e J_e e_Q^K = \frac{1}{2J_g + 1} \sum_{\substack{k, k' \\ q, q'}} a_q^k a_{q'}^{k'*} \frac{\langle eJ_e || Q^k || gJ_g \rangle \langle eJ_e || Q^{k'} || gJ_g \rangle^*}{\sqrt{2k+1} \sqrt{2k'+1}} \times \\ \text{Tr} \left(\begin{matrix} J_e & J_g \\ e & T \end{matrix} \begin{matrix} k \\ q \end{matrix} \right) \left(\begin{matrix} J_e & J_g \\ e & T \end{matrix} \begin{matrix} k' \\ q' \end{matrix} \right)^+ \left(\begin{matrix} J_e & J_e \\ e & T \end{matrix} \begin{matrix} K \\ Q \end{matrix} \right)^+ \quad (\text{C-12})$$

La trace des opérateurs tensoriels irréductibles s'obtient à partir de leur définition (I-12) en utilisant une des relations de définition des coefficients 6-j en fonction des coefficients de Clebsh-Gordan. On a dans le cas général :

$$\text{Tr} \left(\begin{matrix} J_\alpha & J_\beta \\ \alpha & T \end{matrix} \begin{matrix} k \\ q \end{matrix} \right) \left(\begin{matrix} J_\gamma & J_\beta \\ \gamma & T \end{matrix} \begin{matrix} k' \\ q' \end{matrix} \right)^+ \left(\begin{matrix} J_\alpha & J_\gamma \\ \alpha & T \end{matrix} \begin{matrix} K \\ Q \end{matrix} \right)^+ = \\ (-1)^{J_\beta - J_\alpha + 2J_\gamma + K + q'} \sqrt{(2k+1)(2k'+1)} \langle kk' q - q' | KG \rangle \begin{Bmatrix} k & k' & K \\ J_\gamma & J_\alpha & J_\beta \end{Bmatrix} \quad (\text{C-13})$$

L'expression des coefficients d'excitation est alors immédiate. La somme sur les indices q et q' permet de faire apparaître les coefficients $kk' \varphi_Q^K$ définis par :

$$kk' \varphi_Q^K = \sum_{q, q'} (-1)^{k' - q'} a_q^k a_{-q'}^{k'*} \langle kk' q q' | KQ \rangle \quad (\text{C-14})$$

Ces coefficients $kk' \varphi_Q^K$ ne dépendent que de la polarisation de la lumière excitatrice et sont analogues pour l'excitation aux coefficients φ_Q^K qui caractérisent la matrice densité du rayonnement dipolaire électrique.

(Faroux ⁽³⁾, thèse, chapitre V). Finalement les coefficients d'excitation $J_e J_e e_Q^K$ s'écrivent :

$$J_e J_e e_Q^K = \sum_{kk'} kk' \varphi_Q^K \frac{(-1)^{J_e + J_g + K + k'}}{2J_g + 1} \begin{Bmatrix} k & k' & K \\ J_e & J_e & J_g \end{Bmatrix} \langle J_e || Q^k || J_g \rangle \langle J_e || Q^{k'} || J_g \rangle^* \quad (\text{C-15})$$

Le problème de l'excitation est donc résolu et nous pouvons écrire les coefficients de la matrice densité :

$$J_e \rho_Q^K = \frac{4 n_1 n_2 \omega^2}{\epsilon_0 2 \Gamma_e^2} J_e J_e e_Q^K \quad (\text{C-16})$$

Par la suite nous allons appliquer l'expression C-15 au cas du sodium. Dans ce cas, nous avons un couplage L, S. L'opérateur transition à deux photons n'agissant que sur les variables orbitales, nous avons alors :

$$J_e J_e K_{eQ} = \sum_{kk'} (2J_e + 1) \begin{matrix} k & k' & K \\ \varphi & \varphi & Q \end{matrix} (-1)^{J_e + J_g + K + k} \begin{Bmatrix} k & k' & K \\ J_e & J_e & J_g \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} L_e & J_e & S \\ J_g & L_g & k \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} L_e & J_e & S \\ J_g & L_g & k' \end{Bmatrix} \\ \times \langle L_e || Q^k || L_g \rangle \langle L_e || Q^{k'} || L_g \rangle \quad (C-17)$$

C'est cette expression que nous utiliserons ci-dessous pour calculer les intensités des raies de fluorescence après l'excitation à deux photons $3S \rightarrow 4D$.

2°/ Calcul de l'opérateur de détection

Nous supposons que l'état excité J_e fluoresce vers un troisième niveau J_r . Dans le cas de la transition $3S - 4D$ de l'atome de sodium on détecte la lumière émise lors de la retombée vers les niveaux de résonance $3P_{1/2}$ et $3P_{3/2}$. Soit P_r le projecteur sur le sous-espace correspondant au niveau J_r et $\vec{\epsilon}$ la polarisation de détection. Dans ces conditions l'opérateur de détection s'écrit (1) :

$$\mathcal{D} = (\vec{\epsilon} \cdot \vec{D}) P_r (\vec{\epsilon} \cdot \vec{D})^+ \quad (C-18)$$

Nous développons cet opérateur sur la base des opérateurs tensoriels irréductibles :

$$\mathcal{D} = \sum_{J_e, K, Q} J_e J_e d_{eQ}^K J_e J_e T_{eQ}^K \quad (C-19)$$

Les coefficients $J_e J_e d_{eQ}^K$ dépendent du niveau de détection r et de la polarisation $\vec{\epsilon}$. Le calcul de ces coefficients est classique et est en fait analogue au calcul fait précédemment pour l'opérateur d'excitation. Il est intéressant de faire apparaître les composantes standard de la polarisation $\vec{\epsilon}$.

$$\vec{\epsilon} \cdot \vec{D} = \sum_q (-1)^q \epsilon_{-q} D_q^{(1)} \quad (C-20)$$

Le calcul des coefficients $J_e^J e_d^K$ est analogue à celui des coefficients $J_e^J e_Q^K$. On obtient en transposant l'équation C-15 :

$$J_e^J e_d^K = \varphi_Q^K (-1)^{J_e+J_r+K+1} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & K \\ J_e & J_e & J_r \end{Bmatrix} |\langle J_e || D^{(1)} || J_r \rangle|^2 \quad \text{C-21}$$

Les coefficients φ_Q^K caractérisent la matrice densité de rayonnement émis (Faroux ⁽³⁾, thèse, chapitre V). Leur expression est analogue à celles des coefficients $\varphi_Q^{kk'}$ définis ci-dessus (équation C-14, il suffit de remplacer k et k' par l et a_q^k par $(-1)^q \varepsilon_q$) :

$$\varphi_Q^K = \sum_{q,q'} (-1)^{l+q} \varepsilon_{-q} \varepsilon_{q'}^* \langle 11qq' | KQ \rangle \quad \text{C-22}$$

L'opérateur de détection étant hermétique, on a la relation :

$$\varphi_{-Q}^K = (-1)^Q \varphi_Q^K^* \quad \text{C-23}$$

Nous avons rassemblés dans le tableau ci-dessous les valeurs des coefficients φ_Q^K dans le cas d'une polarisation linéaire d'angle θ et ψ et dans le cas des polarisations σ^+ et σ^- ; les angles θ et ψ sont définis de manière telle que le vecteur polarisation $\vec{\varepsilon}$ s'écrive :

$$\vec{\varepsilon} = \sin \psi (\cos \theta \vec{e}_x + \sin \theta \vec{e}_y) + \cos \psi \vec{e}_z \quad \text{C-24}$$

| Polarisation | $\vec{\varepsilon}$ | $\sigma^+ (\varepsilon_q = \delta_{q,-1})$ | $\sigma^- (\varepsilon_q = \delta_{q,1})$ |
|---------------------|---|--|---|
| φ_0^0 | $\frac{1}{\sqrt{3}}$ | $\frac{1}{\sqrt{3}}$ | $\frac{1}{\sqrt{3}}$ |
| φ_0^1 | 0 | $+\frac{1}{\sqrt{2}}$ | $-\frac{1}{\sqrt{2}}$ |
| $\varphi_{\pm 1}^1$ | 0 | 0 | 0 |
| φ_0^2 | $-\frac{\sqrt{2}}{3} (\cos^2 \psi - \frac{1}{2} \sin^2 \psi)$ | $+\frac{1}{\sqrt{6}}$ | $+\frac{1}{\sqrt{6}}$ |
| $\varphi_{\pm 1}^2$ | $\pm \cos \psi \sin \psi e^{\mp i\theta}$ | 0 | 0 |
| $\varphi_{\pm 2}^2$ | $-\frac{1}{2} \sin^2 \psi e^{\mp 2i\theta}$ | 0 | 0 |

Tableau I

Nous voyons qu'une polarisation linéaire ne permet de détecter que la population ($K = 0$) et l'alignement ($K = 2$).

Dans le cas du sodium il est intéressant de comparer les intensités émises vers les deux niveaux de structure fine $3P_{1/2}$ et $3P_{3/2}$. Nous exprimons donc l'élément de matrice réduit du dipôle électrique en fonction de J_e et J_r . Nous sommes dans un cas de couplage L.S et nous avons donc ($S = 1/2$) :

$$J_e J_e \quad d \quad K \quad Q = (-1)^{J_e + J_r + K + 1} (2J_e + 1)(2J_r + 1) \varphi_Q^K \begin{Bmatrix} 1 & 1 & K \\ J_e & J_e & J_r \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} L_e & L_r & 1 \\ J_r & J_e & 1/2 \end{Bmatrix}^2$$

$$|\langle L_e || D^{(1)} || L_r \rangle|^2 \quad (C-25)$$

Nous sommes maintenant en mesure de faire le calcul effectif dans le cas de la transition $3S - 4D$ du sodium.

3°/ Calcul des intensités de fluorescence après l'excitation à deux photons 3S - 4D

Nous faisons ce calcul dans le cas particulier de la géométrie expérimentale que nous avons utilisée (chapitre V - figure V-3) : la lumière excitatrice est polarisée en σ^+ à l'aller et au retour et nous détectons la fluorescence émise perpendiculairement au faisceau laser. Nous choisissons l'axe de quantification parallèle à la direction de propagation du faisceau laser.

Dans ces conditions l'opérateur transition à deux photons est proportionnel à l'opérateur tensoriel irréductible $J_e J_g T_2^2$ (cf. chapitre I - Tableau I). L'opérateur d'excitation s'exprime donc uniquement avec les coefficients ${}^{22}\varphi_Q^K$ (équation C-15). En outre ces coefficients ${}^{22}\varphi_Q^K$ définis par l'expression (C-14) ne seront non nuls que si $Q = 0$ (a_q^k est non nul que si $q = 2$). Nous n'excitons donc que des grandeurs longitudinales ($Q = 0$). Cette propriété va se retrouver pour la matrice densité de l'état excité dans la mesure où l'évolution de celle-ci est isotrope (absence de champ magnétique).

D'autre part nous n'avons utilisé que des polarisations de détection *linéaires*. Dans ces conditions on ne peut observer que la *population* ($K = 0$) et l'*alignement* ($K = 2$) créé dans l'état excité.

Dans le cas de l'excitation du niveau 4D nous détectons la fluorescence vers les niveaux $3P_{3/2}$ ($\lambda = 5688 \text{ \AA}$) et $3P_{1/2}$ ($\lambda = 5682 \text{ \AA}$) (voir chapitre V, figure 1). Pour chacune de ces longueurs d'onde nous regardons soit la polarisation parallèle au faisceau laser I_{π} soit la polarisation perpendiculaire I_{σ} . Nous avons donc au total quatre intensités à calculer. Ces intensités s'expriment à l'aide de la relation C-5 :

$$I \sim T_r \rho_e D^+ = \sum_{\substack{J_e = 3, 5 \\ K = 0, 2}} J_e \rho_o^K J_e J_e d_o^K \quad (C-26)$$

Nous avons rassemblé dans le tableau ci-dessous les valeurs des coefficients $J_e J_e d_o^K$ que nous utilisons.

| Longueur d'onde de détection | Polarisation de détection | $J_e = 3/2$ | | $J_e = 5/2$ | |
|---|---------------------------|----------------|------------------|----------------------------------|------------------------------------|
| | | $K = 0$ | $K = 2$ | $K = 0$ | $K = 2$ |
| $\lambda = 5682 \text{ \AA}$ $J_r = 1/2$ | σ | $\frac{1}{9}$ | $\frac{1}{18}$ | 0 | 0 |
| | π | $\frac{1}{9}$ | $-\frac{1}{9}$ | 0 | 0 |
| $\lambda = 5688 \text{ \AA}$ $J_r = 3/2$ | σ | $\frac{1}{45}$ | $-\frac{2}{225}$ | $\frac{1}{5} \sqrt{\frac{2}{3}}$ | $\frac{1}{25} \sqrt{\frac{7}{3}}$ |
| | π | $\frac{1}{45}$ | $+\frac{4}{225}$ | $\frac{1}{5} \sqrt{\frac{2}{3}}$ | $-\frac{2}{25} \sqrt{\frac{7}{3}}$ |

Coefficients de détection réduits $J_e J_e d_o^K / | \langle L_e || D || L_r \rangle |^2$

Tableau II

On en déduit immédiatement l'expression des intensités de fluorescence :

$$I_{\sigma}(5682) \sim \frac{1}{9} \rho_o^{3/2} + \frac{1}{18} \rho_o^{3/2}$$

$$\begin{aligned}
 I_{\pi} (5682) &\sim \frac{1}{9} \rho_o^{3/2} - \frac{1}{9} \rho_o^2 \\
 I_{\sigma} (5688) &\sim \frac{1}{45} \rho_o^{3/2} - \frac{2}{225} \rho_o^2 + \frac{1}{5\sqrt{3}} \rho_o^{5/2} + \frac{1}{25} \sqrt{\frac{7}{3}} \rho_o^2 \\
 I_{\pi} (5688) &\sim \frac{1}{45} \rho_o^{3/2} + \frac{4}{225} \rho_o^2 + \frac{1}{5\sqrt{3}} \rho_o^{5/2} - \frac{2}{25} \sqrt{\frac{7}{3}} \rho_o^2
 \end{aligned}
 \tag{C-27}$$

Ce sont ces équations que nous avons utilisées au chapitre V pour calculer les intensités des raies de fluorescence en présence de collisions.

4°/ Intensité des raies de fluorescence en absence de collisions

Comme nous l'avons vu (équation C-16) la matrice densité dans l'état excité se calcule facilement à partir des coefficients d'excitation $J_e J_e \quad e \quad K$. Nous avons rassemblé dans le tableau suivant les coefficients d'excitation que nous avons utilisés. Ces coefficients sont calculés à partir de l'expression C-17 dans laquelle nous avons : $k = k' = 2, L_e = 2, L_g = 0$. On a alors :

$$J_e J_e \quad e \quad K = \frac{2J_e + 1}{10} \quad 22 \varphi_Q^K (-1)^{J_e + J_g + K} \left\{ \begin{matrix} 2 & 2 & K \\ J_e & J_e & J_g \end{matrix} \right\} |\langle L_e || D || L_r \rangle|^2
 \tag{C-28}$$

| | $J_e = 3/2$ | | $J_e = 5/2$ | |
|---|----------------------|----------------------|-----------------------------------|-----------------------------------|
| | $K = 0$ | $K = 2$ | $K = 0$ | $K = 2$ |
| $22 \varphi_Q^K$ | $\frac{1}{\sqrt{5}}$ | $\sqrt{\frac{2}{7}}$ | $\frac{1}{\sqrt{5}}$ | $\sqrt{\frac{2}{7}}$ |
| $\frac{J_e J_e \quad e \quad K}{ \langle L_e Q^2 L_g \rangle ^2}$ | $\frac{1}{25}$ | $\frac{1}{25}$ | $\frac{1}{25} \sqrt{\frac{3}{2}}$ | $\frac{2}{25} \sqrt{\frac{3}{7}}$ |

Coefficients d'excitation : $\frac{J_e J_e \quad e \quad k}{|\langle L_e || Q^2 || L_g \rangle|^2} = \frac{\epsilon_o^2 \Gamma_e}{4 n_1 n_2 \omega^2} \times \frac{J_e p \quad K}{|\langle L_e || Q^2 || L_g \rangle|^2}$

Tableau III

L'intensité des raies de fluorescence s'obtient alors directement à partir des équations C-27, les coefficients de la matrice densité $\rho_o^{J_e K}$ étant proportionnels aux coefficients $J_e^{J_e} e_o^K$ (équation C-16). Nous donnons l'ensemble des résultats dans le tableau IV (ces résultats sont donnés à un coefficient multiplicatif près). Nous y indiquons de plus le taux de polarisation T :

$$T = \frac{I_\sigma - I_\pi}{I_\sigma + I_\pi} \quad (C-29)$$

| Longueur d'onde de détection | Polarisation de détection | Excitation du niveau 4D, $J_e = \frac{3}{2}$ | Excitation du niveau 4D, $J_e = \frac{5}{2}$ |
|------------------------------|---|--|--|
| $\lambda = 5682 \text{ \AA}$ | σ | $\frac{25}{3}$ | 0 |
| | π | 0 | 0 |
| | $T = \frac{I_\sigma - I_\pi}{I_\sigma + I_\pi}$ | 1 | |
| $\lambda = 5688 \text{ \AA}$ | σ | $\frac{2}{3}$ | 14 |
| | π | 2 | 2 |
| | $T = \frac{I_\sigma - I_\pi}{I_\sigma + I_\pi}$ | $-\frac{1}{2}$ | $\frac{3}{4}$ |

Intensités des raies de fluorescence lorsque le laser est polarisé en σ^+ et que la détection se fait perpendiculairement au faisceau.

Tableau IV

Nous allons maintenant reprendre ce calcul en tenant compte de la structure hyperfine de l'état excité et de l'état fondamental.

II - INFLUENCE DU SPIN NUCLEAIRE SUR LA POLARISATION DES RAIES DE FLUORESCENCE

Les deux niveaux de structure hyperfine $F_g = 1$ et $F_g = 2$ de l'état fondamental étant distants de 1771 MHz, nous les séparons sans problème à l'excitation. Dans ces conditions nous en tenons compte en remplaçant dans le calcul précédent la matrice densité ρ_g par :

$$\rho(F_g) = \frac{1}{(2J_g + 1)(2I + 1)} \sum_{m_F} |F_g m_F\rangle \langle F_g m_F| \quad (C-30)$$

Nous avons normalisé $\rho(F_g)$ de manière que :

$$\text{tr} [\rho(F_g = 1) + \rho(F_g = 2)] = 1$$

Dans l'état excité la structure hyperfine est plus petite que la largeur naturelle. Nous pouvons donc exciter à la fois les populations et les cohérences des divers niveaux de structure hyperfine d'un niveau de structure fine donné. C'est ce qui va compliquer légèrement le calcul. Cependant la marche à suivre est exactement la même.

1° / Calcul de l'opérateur d'excitation

Nous développons l'opérateur d'excitation sur la base des opérateurs tensoriels irréductibles. Pour la transition de l'état de structure hyperfine F_g vers l'état de structure fine J_e nous avons :

$$E = \sum_{\substack{K, Q \\ F_e, F'_e}} \begin{matrix} F_e F'_e \\ e \end{matrix} \begin{matrix} K \\ Q \end{matrix} (J_e) \begin{matrix} F_e F'_e \\ e \end{matrix} \begin{matrix} K \\ Q \end{matrix} (J_e) \quad (C-31)$$

Nous obtenons alors une expression analogue à C-12 pour les coefficients $\begin{matrix} F_e F'_e \\ e \end{matrix} \begin{matrix} K \\ Q \end{matrix} (J_e)$. Nous introduisons ici les opérateurs tensoriels $\begin{matrix} II \\ T \\ 0 \end{matrix}$ et $\begin{matrix} F_g F_g \\ T \\ 0 \end{matrix}$

$$\begin{matrix} II \\ T \\ 0 \end{matrix} = \frac{1}{\sqrt{2I+1}} \sum_{m_I} |Im_I\rangle \langle Im_I| \quad \text{et} \quad \begin{matrix} F_g F_g \\ T \\ 0 \end{matrix} = \frac{1}{\sqrt{2F_g+1}} \sum_{m_g} |Fm_g\rangle \langle Fm_g| \quad (C-32)$$

Nous obtenons alors :

$$F_e F_e' e_Q^K (J_e) = \frac{\sqrt{2F_g+1}}{2J_g+1} \sum_{\substack{k,k' \\ q,q'}} a_q^k a_{q'}^{k'*} \frac{\langle eJ_e || Q^k || gJ_g \rangle \langle eJ_e || Q^{k'} || gJ_g \rangle}{\sqrt{2k+1} \sqrt{2k'+1}}$$

$$\times \text{Tr} \left[\left(\begin{matrix} J_e & J_g & k \\ F_e & F_g & I \end{matrix} \right) \otimes \begin{matrix} II \\ T_o^0 \end{matrix} \left(\begin{matrix} F_g & F_g & T_o^0 \\ J_g & & \end{matrix} \right) \left(\begin{matrix} J_e & J_g & k' \\ F_e & F_g & I \end{matrix} \right) \otimes \begin{matrix} II \\ T_o^0 \end{matrix} \left(\begin{matrix} F_e & F_e' & T_Q^K \\ J_e & & \end{matrix} \right) \right]$$

(C-33)

Nous exprimons tous les opérateurs tensoriels dans la base couplée (J,I)F. Les formules de changement de base sont les inverses de l'expression (IV-29). Du fait que l'un des coefficients k est nul, nous obtenons une expression plus simple :

$$\begin{matrix} J_e & J_g & k \\ F_e & F_g & I \end{matrix} \otimes \begin{matrix} II \\ T_o^0 \end{matrix} = \sum_{F_e, F_g} (-1)^{F_g+J_e+I+k} \sqrt{\frac{(2F_e+1)(2F_g+1)}{(2I+1)}}$$

$$\times \left\{ \begin{matrix} J_e & J_g & k \\ F_g & F_e & I \end{matrix} \right\} F_e F_g T_q^k (J_e, J_g)$$

(C-34)

La trace du produit d'opérateur tensoriel se calcule comme précédemment. On obtient alors à partir de C-33 et C-34 :

$$F_e F_e' e_Q^K (J_e) = \sum_{kk'} \varphi_Q^K (-1)^{F_e+F_g+k+K} \frac{\sqrt{(2F_e+1)(2F_e'+1)} (2F_g+1)}{(2I+1)(2J_g+1)}$$

$$\times \left\{ \begin{matrix} J_e & J_g & k \\ F_g & F_e & I \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} J_e & J_g & k' \\ F_g & F_e' & I \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} k & k' & K \\ F_e' & F_e & F_g \end{matrix} \right\} \langle J_e || Q^k || J_g \rangle \langle J_e || Q^{k'} || J_g \rangle^*$$

(C-35)

Nous devons maintenant étudier l'évolution de la matrice densité dans l'état excité.

2°/ Evolution de la matrice densité dans l'état excité

L'équation d'évolution dans l'état excité s'écrit :

$$\frac{d\rho}{dt} = \left(\frac{d\rho_e}{dt} \right)_p - \Gamma_e \rho_e - \frac{i}{\hbar} [H, \rho]$$

(C-36)

En développant sur une base d'opérateur tensoriel irréductible, on obtient à l'état stationnaire :

$$F_e F'_e \rho_Q^K = \frac{4 n_1 n_2 \omega^2}{\epsilon_0^2 \Gamma_e} \times \frac{F_e F'_e e_Q^K (J_e)}{\Gamma_e + i(\omega_{F'_e} - \omega_{F_e})} \quad (C-37)$$

$\hbar\omega_{F_e}$ étant l'énergie du niveau de structure hyperfine F_e . La signification physique de l'équation C-37 est très simple. Nous créons à l'excitation des cohérences entre sous niveaux hyperfins de l'état excité J_e et ces cohérences évoluent pendant la durée de vie atomique. Il s'agit là d'un effet analogue à l'effet Hanle, le hamiltonien Zeeman étant simplement remplacé par le hamiltonien hyperfin.

3°/ Calcul des intensités de fluorescence

Pour obtenir les intensités de fluorescence nous devons exprimer l'opérateur de détection dans la base couplée $(J,I)F$. Dans la mesure où nous ne sélectionnons pas à la détection les divers niveaux de structure hyperfine, il suffit de faire dans la formule C-19 un simple changement de base. Les nouveaux coefficients de détection $F_e F'_e d_Q^K$ sont définis par :

$$\mathcal{D} = \sum_{\substack{F_e F'_e \\ K Q}} F_e F'_e d_Q^K F_e F'_e T_Q^K \quad (C-38)$$

On les calcule en fonction des anciens coefficients à l'aide de C-34. On obtient :

$$F_e F'_e d_Q^K = (-1)^{F'_e + J_e + I + K} \sqrt{(2F_e + 1)(2F'_e + 1)} \begin{Bmatrix} J_e & J_e & K \\ F'_e & F_e & I \end{Bmatrix} F_e F'_e d_Q^K \quad (C-39)$$

Finalement, à partir des équation C-5, C-35, C-37 et C-39 on obtient l'intensité I de la fluorescence :

$$I \sim \sum_{\substack{F_e F'_e \\ K Q}} F_e F'_e \rho_Q^K F_e F'_e d_Q^{K*} \quad (C-40)$$

Soit au facteur $\frac{4 n_1 n_2 \omega^2}{\epsilon_0^2 \Gamma_e}$ près :

$$\begin{aligned}
 I \sim \sum_{\substack{F_e, F'_e \\ K, Q \\ k, k'}} & (-1)^{F_e + F'_e + k + J_e + I} \times \frac{(2F_e + 1)(2F'_e + 1)(2F_g + 1)}{(2I + 1)(2J_g + 1)} \times \frac{1}{\Gamma_e + i(\omega_{F_e} - \omega_{F'_e})} \\
 & \times \begin{Bmatrix} J_e & J_g & k \\ F_g & F_e & I \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J_e & J_g & k' \\ F_g & F'_e & I \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k & k' & K \\ F'_e & F_e & F_g \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J_e & J_e & K \\ F'_e & F_e & I \end{Bmatrix} \\
 & \times \varphi_{Q}^{kk'} \langle J_e || Q^k || J_g \rangle \langle J_e || Q^{k'} || J_g \rangle^* \begin{matrix} J_e J_e & K \\ d & Q \end{matrix} \quad (C-41)
 \end{aligned}$$

Dans le cas particulier où la structure hyperfine de l'état excité est nulle ($\omega_{F_e} - \omega_{F'_e} = 0$), les coefficients 6-j se resomment (Messiah ⁽⁴⁾, appendice C - formule 35c et 35e) et l'on a :

$$I \sim \sum_{K, Q} \frac{2F_g + 1}{(2I + 1)(2J_g + 1)} \begin{matrix} J_e J_e & K \\ e & Q \end{matrix} \begin{matrix} J_e J_e & K \\ d & Q \end{matrix} \times \frac{1}{\Gamma_e} \quad (C-42)$$

A un facteur de population près nous retrouvons le résultat obtenu lorsqu'il n'y a pas de spin nucléaire. Le fait que l'on sélectionne au départ un niveau de structure hyperfine particulier n'a donc pas d'importance si la structure hyperfine de l'état excité est très petite devant Γ_e . Dans le cas contraire il n'y a pas de resommation possible à cause du facteur d'évolution $[\Gamma_e + i(\omega_{F_e} - \omega_{F'_e})]^{-1}$ et l'on doit calculer chaque terme de l'équation C-41.

Dans le cas de la transition 3S - 4D, l'opérateur transition à deux photons est un opérateur quadripolaire ($k = k' = 2$). On peut alors écrire l'intensité I en faisant apparaître les coefficients d'excitation $\begin{matrix} J_e J_e & K \\ e & Q \end{matrix}$ définis en absence de structure hyperfine (équation C-15). On a alors, en séparant les termes correspondant aux populations des niveaux hyperfins ($F_e = F'_e$) des termes correspondant aux cohérences ($F_e \neq F'_e$) :

$$\begin{aligned}
I \sim & \sum_{K,Q} \frac{2F_g+1}{2I+1} \times \frac{(-1)^{F_g+2J_e+J_g+I+K}}{\begin{Bmatrix} 2 & 2 & K \\ J_e & J_e & J_g \end{Bmatrix}} \times \begin{matrix} J_e J_e & e & K \\ & & Q \end{matrix} \begin{matrix} J_e J_e & d & K \\ & & Q \end{matrix} \cdot \frac{1}{\Gamma_e} \\
& \times \left[\sum_{F_e} (2F_e+1)^2 (-1)^{2F_e} \begin{Bmatrix} J_e & J_g & 2 \\ F_g & F_e & I \end{Bmatrix}^2 \begin{Bmatrix} 2 & 2 & K \\ F_e & F_e & F_g \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J_e & J_e & K \\ F_e & F_e & I \end{Bmatrix} \right] + \\
& 2 \sum_{F_e < F'_e} (-1)^{F_e+F'_e} (2F_e+1)(2F'_e+1) \times \frac{\Gamma_e^2}{\Gamma_e^2 + (\omega_{F_e} - \omega_{F'_e})^2} \times \\
& \times \left\{ \begin{Bmatrix} J_e & J_g & 2 \\ F_g & F_e & I \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J_e & J_g & 2 \\ F_g & F'_e & I \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 2 & 2 & K \\ F'_e & F_e & F_g \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J_e & J_e & K \\ F'_e & F_e & I \end{Bmatrix} \right\} \quad (C-43)
\end{aligned}$$

Dans notre cas nous avons $Q = 0$ et la somme sur K se réduit à deux termes ($K = 0$ et $K = 2$). Le terme correspondant à la population ($K = 0$) se resomme car l'on a $F_e = F'_e$. L'intensité I s'écrit donc encore :

$$\begin{aligned}
I \sim & \frac{2F_g+1}{(2I+1)(2J_g+1)} \times \frac{1}{\Gamma_e} \left[\begin{matrix} J_e J_e & e & 0 \\ & & 0 \end{matrix} \begin{matrix} J_e J_e & d & 0 \\ & & 0 \end{matrix} + \begin{matrix} J_e J_e & e & 2 \\ & & 0 \end{matrix} \begin{matrix} J_e J_e & d & 2 \\ & & 0 \end{matrix} \right] \times \\
& \left(\frac{(-1)^{F_g+2J_e+J_g+I}}{\begin{Bmatrix} 2 & 2 & 2 \\ J_e & J_e & J_g \end{Bmatrix}} \sum_{F_e} (-1)^{2F_e} (2F_e+1)^2 \begin{Bmatrix} J_e & J_g & 2 \\ F_g & F_e & I \end{Bmatrix}^2 \begin{Bmatrix} 2 & 2 & 2 \\ F_e & F_e & F_g \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J_e & J_e & 2 \\ F_e & F_e & I \end{Bmatrix} \right) + \\
& 2 \sum_{F_e < F'_e} (-1)^{F_e+F'_e} (2F_e+1)(2F'_e+1) \frac{\Gamma_e^2}{\Gamma_e^2 + (\omega_{F_e} - \omega_{F'_e})^2} \\
& \left. \left. \left. \left. \begin{Bmatrix} J_e & J_g & 2 \\ F_g & F_e & I \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J_e & J_g & 2 \\ F_g & F'_e & I \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 2 & 2 & 2 \\ F'_e & F_e & F_g \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} J_e & J_e & 2 \\ F'_e & F_e & I \end{Bmatrix} \right) \right) \right) \right) \quad (C-44)
\end{aligned}$$

Les coefficients $\begin{matrix} J_e J_e & e & K \\ & & 0 \end{matrix}$ et $\begin{matrix} J_e J_e & d & K \\ & & 0 \end{matrix}$ sont ceux donnés dans les tableaux III et II. Nous voyons à partir de l'équation C-44 que le seul effet de la

structure hyperfine est de modifier le terme correspondant à l'alignement. Le coefficient rectificatif *dépend* du niveau hyperfin à partir duquel on excite (F_g) et du niveau de structure fine excité (J_e). Il est par contre *indépendant* de la longueur d'onde et de la polarisation de la lumière de fluorescence. La formule ci-dessus est donc relativement simple.

Le problème de l'intensité des raies de fluorescence est donc totalement résolu. Ces intensités dépendent de la constante de structure hyperfine par l'intermédiaire des différences d'énergie entre niveaux hyperfins :

$$\omega_{F_e} - \omega_{F'_e} = \frac{A}{2} [F_e(F_e + 1) - F'_e(F'_e + 1)] \quad (C-45)$$

Nous avons utilisé l'expression C-44 pour calculer les taux de polarisation des raies de fluorescence en fonction de la structure hyperfine. Nous donnons quelques valeurs numériques dans le tableau suivant. Les courbes correspondantes sont celles que nous avons utilisées au chapitre V (figure V-11).

| Niveau final | 4D $J_e = \frac{3}{2}$ | | | | 4D $J_e = \frac{5}{2}$ | |
|----------------------------|------------------------|-----------------|-----------------|-----------------|------------------------|-----------------|
| | 5682 Å | | 5688 Å | | 5688 Å | |
| Longueur d'onde | | | | | | |
| Niveau initial A/ F_e | $3S_{1/2}, F=1$ | $3S_{1/2}, F=2$ | $3S_{1/2}, F=1$ | $3S_{1/2}, F=2$ | $3S_{1/2}, F=1$ | $3S_{1/2}, F=2$ |
| 0 | 1 | 1 | - 0,5 | - 0,5 | 0,75 | 0,75 |
| 0,05 | 0,984 | 0,971 | - 0,495 | - 0,491 | 0,739 | 0,730 |
| 0,1 | 0,941 | 0,897 | - 0,481 | - 0,466 | 0,708 | 0,680 |
| 0,2 | 0,822 | 0,710 | - 0,440 | - 0,398 | 0,619 | 0,567 |
| 0,5 | 0,570 | 0,36 | - 0,340 | - 0,235 | 0,402 | 0,386 |
| 1,0 | 0,450 | 0,20 | - 0,283 | - 0,142 | 0,276 | 0,319 |
| ∞ | 0,390 | 0,122 | - 0,253 | - 0,091 | 0,206 | 0,289 |

Taux de polarisation $T = \frac{I_{\sigma} - I_{\pi}}{I_{\sigma} + I_{\pi}}$ des raies de fluorescence en fonction de la constante de structure hyperfine

Tableau V

A P P E N D I C E D

DETAILS SUR LES POTENTIELS D'INTERACTION

Nous donnons dans cet appendice quelques précisions sur les potentiels interatomiques que nous avons utilisés au chapitre VI. Nous allons d'abord établir en détail l'expression du potentiel à longue portée. Nous rappellerons ensuite les valeurs numériques des potentiels de Pascale et Vandepplanque.

I - POTENTIEL A LONGUE PORTEE

Nous considérons deux atomes 1 et 2 interagissant entre eux. Dans notre cas l'atome 1 est par exemple le sodium et l'atome 2 le perturbateur (gaz rare). Il est classique de développer le hamiltonien d'interaction H en moment multipolaire. On peut écrire symboliquement :

$$H = \frac{1}{R^3} D_1 D_2 + \frac{1}{R^4} (D_1 Q_2 + Q_1 D_2) + \frac{1}{R^5} (D_1 O_2 + Q_1 Q_2 + O_1 D_2) + \dots$$

(D-1)

D_i, Q_i et O_i représentant le dipole, le quadrupole et l'octupole de l'atome i.

Nous allons noter $|a\rangle$ les états de l'atome 1 (sodium) d'énergie E_a et $|b\rangle$ les états de l'atome 2 (gaz rare). Nous supposons qu'initialement le système atomique est dans l'état $|a_0, b_0\rangle = |a_0\rangle \otimes |b_0\rangle$ et nous faisons un calcul de perturbation pour calculer l'énergie de cet état. Dans notre cas $|b_0\rangle$ est l'état fondamental du gaz rare de moment cinétique $J = 0$. De ce fait tous les moments multipolaires D_2, Q_2, O_2 , etc... ont une valeur moyenne nulle dans l'état $|b_0\rangle$. On en déduit que l'énergie de l'état $|a_0, b_0\rangle$ n'est pas perturbée au premier ordre. Les premiers termes correctifs apparaissent donc au second ordre. Le terme d'ordre le plus bas varie en $\frac{1}{R^6}$. Nous allons d'abord préciser ce terme.

1°/ Potentiel de Van der Waals en $1/R^6$

Le calcul du terme en $1/R^6$ est tout à fait classique (1). En se limitant au terme en $1/R^3$, le hamiltonien d'interaction H s'écrit (2) en utilisant les unités atomiques (longueur a_0 , énergie $\frac{e^2}{a_0}$) :

$$H = \frac{e^2}{R^3} (x_1 x_2 + y_1 y_2 - 2z_1 z_2) \quad (D-2)$$

Dans cette expression (x_1, y_1, z_1) et (x_2, y_2, z_2) représente les coordonnées des électrons des atomes 1 et 2, l'axe z étant l'axe internucléaire. L'énergie $V(R)$ va s'écrire au second ordre :

$$V(R) = -\frac{e^4}{R^6} \sum_{a,b} \frac{\langle a_0, b_0 | x_1 x_2 + y_1 y_2 - 2z_1 z_2 | ab \rangle \langle ab | x_1 x_2 + y_1 y_2 - 2z_1 z_2 | a_0 b_0 \rangle}{(E_a + E_b) - (E_{a_0} + E_{b_0})} \quad (D-3)$$

Il est alors classique de remplacer le dénominateur d'énergie par sa valeur moyenne $\overline{\Delta E}$:

$$E_a + E_b - (E_{a_0} + E_{b_0}) \approx \overline{\Delta E} \quad (D-4)$$

Ceci se justifie dans la mesure où :

- l'énergie des états excités du gaz rare est grande devant l'énergie des niveaux excités du sodium ;

- la différence entre l'énergie d'ionisation du gaz rare et l'énergie du premier état excité du gaz rare est petite devant cette énergie d'ionisation.

Cette approximation permet de faire apparaître la relation de fermeture. Il apparaît alors que, l'état $|b_o\rangle$ étant de moment cinétique nul, seuls les termes carrés de l'expression D-3 seront non nuls. On a en effet pour un terme rectangle :

$$\sum_{a,b} \langle a_o b_o | x_1 x_2 | ab \rangle \langle ab | y_1 y_2 | a_o b_o \rangle = \sum_{a,b} \langle a_o | x_1 y_1 | a_o \rangle \langle b_o | x_2 y_2 | b_o \rangle = 0$$

On a alors, en notant r_1 et r_2 les rayons vecteurs des électrons des atomes 1 et 2 :

$$\langle b_o | x_2^2 | b_o \rangle = \langle b_o | y_2^2 | b_o \rangle = \langle b_o | z_2^2 | b_o \rangle = \frac{1}{3} \langle b_o | r_2^2 | b_o \rangle \quad (D-5)$$

$$z_1 = r_1 \cos\theta \quad (D-6)$$

En utilisant le fait que les variables orbitales se séparent des variables radiales on obtient finalement :

$$V(R) = - \frac{e^4 \langle a_o | r_1^2 | a_o \rangle \langle b_o | r_2^2 | b_o \rangle}{3R^6 \Delta E} (1 + 3\cos^2\theta) \quad (D-7)$$

Il est alors possible de faire apparaître la polarisabilité statique α du gaz rare. On a en utilisant les unités atomiques (l'unité est a_o^3)

$$\alpha = \frac{2}{3} e^2 \sum_b \frac{|\langle b_o | r^2 | b_o \rangle|^2}{E_b - E_{b_o}} \quad (D-8)$$

Dans la mesure où les différences d'énergie $E_a - E_{a_o}$ de l'atome 1 (sodium) sont petites par rapport aux différences d'énergie $E_b - E_{b_o}$ de l'atome 2 (gaz rare), nous avons :

$$E_b - E_{b_o} \approx E_b - E_{b_o} + E_a - E_{a_o} \approx \overline{\Delta E} \quad (D-9)$$

On a alors :

$$\alpha = \frac{2}{3} \frac{e^2 \langle b_o | r_2^2 | b_o \rangle}{\overline{\Delta E}} \quad (D-10)$$

Et :

$$V(R) = - \frac{e^2 \alpha \langle a_0 | r_1^2 | a_0 \rangle}{R^6} \left(\frac{1}{2} + \frac{3}{2} \cos^2 \theta \right) \quad (D-11)$$

Le potentiel est alors complètement déterminé par la connaissance de la polarisabilité du gaz rare et par la valeur moyenne $\langle a_0 | r_1^2 | a_0 \rangle$ pour l'état $|a_0\rangle$ de l'alcalin. Cette valeur moyenne peut s'exprimer à l'aide des forces d'oscillateurs (Faroux, thèse p. 69) ; en utilisant les unités atomiques, on a :

$$\langle a_0 | r_1^2 | a_0 \rangle = \frac{3}{2} \sum_a \frac{f_{a_0 a}}{E_a - E_{a_0}} \quad (D-12)$$

Dans le cas d'un niveau nS , l'état de l'alcalin a la symétrie sphérique et l'on a :

$$\langle a_0 | \cos^2 \theta | a_0 \rangle = \frac{1}{3}$$

D'où :

$$V(R) = - \frac{e^2 \alpha \langle r_1^2 \rangle_{nS}}{R^6} ; \quad \langle r_1^2 \rangle_{nS} = \langle nS | r_1^2 | nS \rangle \quad (D-13)$$

C'est cette expression que nous avons utilisée au chapitre VI. A longue distance le potentiel est attractif. Il faut noter que ce résultat tient à la validité de l'approximation (D-4). Si $E_a - E_{a_0}$ est du même ordre de grandeur que $E_b - E_{b_0}$ le dénominateur d'énergie E peut devenir négatif et le potentiel pourrait être répulsif dans certains cas.

Nous allons nous intéresser maintenant au terme suivant du développement du potentiel en puissance de $\frac{1}{R}$.

2°/ Potentiel à longue portée en $1/R^8$

Nous calculons le terme suivant du développement de l'énergie $H(R)$ à partir du hamiltonien d'interaction V défini en D-1. Comme nous l'avons vu, l'énergie de l'état $|a_0, b_0\rangle$ n'est pas perturbée au premier ordre, le moment cinétique de l'état $|b_0\rangle$ étant nul. Au second ordre, le terme suivant du développement est a priori le terme en $1/R^7$:

$$\frac{1}{R^7} \sum_{a,b} \langle a_o b_o | D_1 D_2 | ab \rangle \langle ab | D_1 Q_2 + Q_1 D_2 | a_o b_o \rangle \quad (D-14)$$

Il est clair que, pour un état $|a_o b_o\rangle$ donné, ce terme est nul pour des raisons de parité. Par contre ce terme a des éléments de matrice non nuls entre des états $|a_o b_o\rangle$ et $|a'_o b_o\rangle$ si $|a_o\rangle$ et $|a'_o\rangle$ sont de parité différente.

Le terme suivant du développement de l'énergie $H(R)$ est donc le terme en $1/R^8$ qui s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{1}{R^8} \sum_{a,b} \langle a_o b_o | D_1 Q_2 + Q_1 D_2 \frac{|ab\rangle \langle ab|}{\Delta E} | D_1 Q_2 + D_2 Q_1 | a_o b_o \rangle \\ + \frac{1}{R^8} \sum_{a,b} [\langle a_o b_o | D_1 D_2 \frac{|ab\rangle \langle ab|}{\Delta E} | D_1 Q_2 + Q_1 Q_2 + Q_1 D_2 | a_o b_o \rangle + c.c.] \end{aligned} \quad (D-15)$$

Le premier terme de cette expression vient du terme en $1/R^4$ de V au second ordre et le second terme vient des termes en $1/R^3$ et $1/R^5$ de V au second ordre.

En fait, dans notre cas, cette expression se simplifie dans la mesure où l'atome de gaz rare (atome 2) est beaucoup plus petit que l'atome de sodium dans l'état excité (atome 1). En effet le moment d'ordre k de l'atome i est en gros proportionnel à r_i^k . On en déduit par exemple :

$$\frac{D_1 Q_2}{D_2 Q_1} \approx \frac{r_2}{r_1} \ll 1 \quad \frac{Q_1 Q_2}{Q_1 D_2} \approx \frac{r_2}{r_1} \ll 1 \quad \frac{D_1 Q_2}{Q_1 D_2} \approx \left(\frac{r_2}{r_1} \right)^2 \ll 1$$

Ceci nous permet de négliger dans l'expression du hamiltonien V tous les termes ne faisant pas intervenir D_2 . En se limitant aux seuls termes où D_2 intervient, V s'écrit ⁽²⁾ :

$$\begin{aligned} H &= \frac{e^2}{3} (x_1 x_2 + y_1 y_2 - 2z_1 z_2) \\ &+ \frac{3}{2} \frac{e^2}{R^4} [r_1^2 z_2 + (2x_1 x_2 + 2y_1 y_2 - 3z_1 z_2) z_1] \\ &+ \frac{1}{2} \frac{e^2}{R^5} [3r_1^2 (4z_1 z_2 - x_1 x_2 - y_1 y_2) + 5z_1^2 (3x_1 x_2 + 3y_1 y_2 - 4z_1 z_2)] \end{aligned} \quad (D-16)$$

Nous faisons alors un calcul de perturbation au second ordre analogue à celui fait ci-dessus pour le terme en $1/R^6$; nous en rappelons les deux points particuliers :

- nous remplaçons le dénominateur d'énergie $E = E_a + E_b - (E_{a_0} + E_{b_0})$ par une valeur moyenne $\overline{\Delta E}$;
- les termes rectangles du type $x_2 y_2$ donnent une contribution nulle car l'état $|b_0\rangle$ est de moment cinétique nul.

Le calcul se fait alors simplement. L'énergie $H(R)$ s'écrit :

$$\begin{aligned}
 V(R) = & \frac{e^4}{R^8 \overline{\Delta E}} \frac{9}{4} [4\langle x_1^2 z_1^2 \rangle \langle x_2^2 \rangle + 4\langle y_1^2 z_1^2 \rangle \langle y_2^2 \rangle + \langle (r_1^2 - 3z_1^2)^2 \rangle \langle z_2^2 \rangle] \\
 & + \frac{e^4}{R^8 \overline{\Delta E}} [(15\langle z_1^2 x_1^2 \rangle - 3\langle r_1^2 x_1^2 \rangle) \langle x_2^2 \rangle + (15\langle z_1^2 y_1^2 \rangle - 3\langle r_1^2 y_1^2 \rangle) \langle y_2^2 \rangle \\
 & + (40\langle z_1^4 \rangle - 24\langle r_1^2 z_1^2 \rangle) \langle z_2^2 \rangle] \quad (D-17)
 \end{aligned}$$

Dans cette expression les crochets $\langle \rangle$ signifie la moyenne sur les états $|a_0\rangle$ et $|b_0\rangle$ selon qu'il s'agisse de l'atome 1 ou de l'atome 2. A ce stade on peut faire apparaître la polarisabilité statique α du gaz rare et l'angle θ défini par D-7. On obtient finalement :

$$V(R) = - \frac{\alpha e^2 \langle r_1^2 \rangle}{R^6} \left(\frac{1}{2} + \frac{3}{2} \cos^2 \theta \right) - \frac{\alpha e^2 \langle r_1^4 \rangle}{R^8} \left(-\frac{3}{8} - \frac{21}{4} \cos^2 \theta + \frac{145}{8} \cos^4 \theta \right)$$

C'est cette expression que nous avons utilisée au chapitre VI (équation VI-78).

II - POTENTIELS DE PASCALE ET VANDEPLANQUE

Nous donnons dans les tableaux suivants les valeurs numériques des potentiels calculés par Pascale et Vandepianque dont nous avons eu besoin. Les valeurs correspondant à un même état sont disposées en colonnes. Pour chaque couple sodium gaz rare nous indiquons successivement la distance inter-

atomique R (en unité atomique) puis les énergies des états $|(3S_{1/2}) \Lambda = \frac{1}{2}\rangle$, $|(5S_{1/2}) \Lambda = \frac{1}{2}\rangle$, $|(4D_{5/2}) \Lambda = \frac{1}{2}\rangle$, $|(4D_{3/2}) \Lambda = \frac{1}{2}\rangle$, $|(4D_{5/2}) \Lambda = \frac{3}{2}\rangle$, $|(4D_{3/2}) \Lambda = \frac{3}{2}\rangle$, et $|(4D_{5/2}) \Lambda = \frac{5}{2}\rangle$ (l'unité est 1000 cm^{-1}).

Dans le cas du niveau 4D, Pascale et Vandepianque utilisent la base couplée (L,S)J. Dans nos calculs nous avons négligé la structure fine et nous nous sommes donc placé dans la base découplée $|LM\rangle \otimes |S m_S\rangle$. Nous devons donc relier les potentiels V_M dont nous avons besoin aux potentiels $V(J, M_J)$ donné par Pascale et Vandepianque. Pour cela nous allons supposer que l'interaction de structure fine $A \vec{L} \cdot \vec{S}$ est indépendante de la distance interatomique. Dans ces conditions nous pouvons écrire dans la base découplée $|L M\rangle \otimes |S m_S\rangle$ le hamiltonien total. Dans cette base, le hamiltonien n'est pas diagonal et se décompose en sous-matrices correspondant aux diverses valeurs de M_J . Celles-ci s'écrivent :

| | | | | |
|---------------------|---|------------------------|---|------------------------|
| $M_J = \frac{5}{2}$ | $ 22\rangle \otimes 1/2 \ 1/2\rangle$ | $V_2 + A$ | | |
| | $ 22\rangle \otimes 1/2 \ 1/2\rangle$ | $V_2 + A$ | | |
| $M_J = \frac{3}{2}$ | $ 22\rangle \otimes 1/2 \ -1/2\rangle$ | $V_2 - A$ | $ 21\rangle \otimes 1/2 \ 1/2\rangle$ | A |
| | $ 22\rangle \otimes 1/2 \ -1/2\rangle$ | $V_2 - A$ | $ 21\rangle \otimes 1/2 \ 1/2\rangle$ | A |
| | $ 21\rangle \otimes 1/2 \ +1/2\rangle$ | A | $ 21\rangle \otimes 1/2 \ +1/2\rangle$ | $V_1 + \frac{A}{2}$ |
| $M_J = \frac{1}{2}$ | $ 21\rangle \otimes 1/2 \ -1/2\rangle$ | $V_1 - \frac{A}{2}$ | $ 20\rangle \otimes 1/2 \ 1/2\rangle$ | $\sqrt{\frac{3}{2}} A$ |
| | $ 21\rangle \otimes 1/2 \ -1/2\rangle$ | $V_1 - \frac{A}{2}$ | $ 20\rangle \otimes 1/2 \ 1/2\rangle$ | $\sqrt{\frac{3}{2}} A$ |
| | $ 20\rangle \otimes 1/2 \ +1/2\rangle$ | $\sqrt{\frac{3}{2}} A$ | $ 20\rangle \otimes 1/2 \ +1/2\rangle$ | V_0 |

Par invariance de la trace dans un changement de base, on déduit immédiatement :

$$\begin{aligned}
 V(5/2, 5/2) &= V_2 + A \\
 V(5/2, 3/2) + V(3/2, 3/2) &= V_1 + V_2 - \frac{A}{2} \\
 V(5/2, 1/2) + V(3/2, 1/2) &= V_1 + V_0 - \frac{A}{2}
 \end{aligned}$$

On en déduit immédiatement les potentiels V_0 , V_1 et V_2 :

$$V_2 = V(5/2, 5/2) - A$$

$$V_1 = V(5/2, 3/2) + V(3/2, 3/2) - V_2 + \frac{A}{2}$$

$$V_0 = V(5/2, 1/2) + V(3/2, 1/2) - V_1 + \frac{A}{2}$$

Ce sont ces relations que nous avons utilisées pour déterminer les potentiels V_0 , V_1 et V_2 indépendants de la structure fine.

Na-Ar

Table with 8 columns (R(AU), V1(1/2), V9(1/2), V10(1/2), V11(1/2), V5(3/2), V6(1/2), V2(5/2)) and 8 rows (R(AU), LIMIT, 3S1/2, 4D5/2, 4D3/2, 4D5/2, 4D3/2, 4D5/2).

Na - Kr

Table with columns for atomic number (R(AH)), and various isotopic data for Na (VI(1/2), V(1/2), VI(1/2), VII(1/2), V(1/2), VI(3/2), V(1/2)), and Kr (VI(1/2)). Includes LIMIT and 351/2, 551/2, 405/2, 403/2, 405/2, 403/2, 405/2 labels at the bottom.

BIBLIOGRAPHIE - Introduction

- 1 W. HANLE - Zeit. Physik. 30 (1924) 93
- 2 I.I. RABI, S. MILLMAN et J.R. ZACHARIAS - Phys. Rev. 55 (1939) 529
- 3 J. BROSSEL et F. BITTER - Phys. Rev. 83 (1952) 210
- 4 F.D. COLEGROVE, P.A. FRANKEN, R.R. LEWIS et R.H. SANDS -
Phys. Rev. Lett. 3 (1959) 420
- 5 S. HAROCHE, J.A. PAISNER et A.L. SCHAWLOW - Phys. Rev. Lett. 30 (1973) 948
- 6 H.T. DUONG, P. JACQUINOT, S. LIBERMAN, J.L. PICQUE, J. PINARD et
J.L. VIALLE - Opt. Comm. 7 (1973) 371
- 7 R.G. BREWER, M.J. KELLEY et A. JAVAN - Phys. Rev. Lett. 23 (1969) 559
T.W. HANSCH, M.D. LEVENSON et A.L. SCHAWLOW - Phys. Rev. Lett.
26 (1971) 946
- 8 S. HAROCHE et F. HARTMANN - Phys. Rev. A6 (1972) 1299
- 8 L.S. VASILENKO, V.P. CHEBOTAEV et A.V. SHISHAEV - JETP Lett. 12 (1970) 161
- 9 M. GOEPPERT - MAYER - Ann. Phys. 9 (1931) 273
- 10 J.M. WINTER - Thèse - Anns de Phys. 4 (1959) 745
- 11 J.D. ABELLA - Phys. Rev. Lett. 9 (1962) 453
- 12 F. BIRABEN, B. CAGNAC et G. GRYNBERG - Phys. Rev. Lett. 32 (1974) 643
- 13 T.W. HANSCH, K. HARVEY, G. MEISEL et A.L. SCHALOW - Opt. Comm.
11 (1974) 50
- 14 M.D. LEVENSON et N. BLOEMBERGEN - Phys. Rev. Lett. 32 (1974) 645
- 15 G. GRYNBERG et B. CAGNAC - Reports on Progress in Physics 40 (1977) 791
- 16 C. BORDE - C.R. Acad. Sc. 282.B (1976) 341
- 17 J. PASCALE et J. VANDEPLANQUE - J. Chem. Phys. 60 (1974) 2278

BIBLIOGRAPHIE - Chapitre I

- 1 G. GRYNBERG - Thèse Paris (1976)
- 2 L.S. VASILENKO, V.P. CHEBOTAYEV et A.V. SHISHAEV - JETP Lett. 12 (1970) 161
- 3 B. CAGNAC - Séminaire interne du Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'E.N.S. (1971) non publié
- 4 M. GOPPERT-MAYER - Ann. Phys. 9 (1931) 273
- 5 B. CAGNAC, G. GRYNBERG et F. BIRABEN - J. Phys. 34 (1973) 845
- 6 U. FANO et G. RACAH - "Irreducible Tensorial Sets", Academic Press Inc., New York, 1959
- 7 J. KRASINSKI, S. CHUDZYNSKI, W. MAJEWSKI et M. GLODZ - Opt. Comm. 12 (1974) 304
- 8 C. LECOMPTE, G. MAINFRAY, C. MANUS et F. SANCHEZ - Phys. Rev. Lett. 32 (1974) 265 et Phys. Rev. A 11 (1975) 1009
- 9 C. BORDE - C.R. Acad. Sc. 282 B (1976) 341
- 10 H. KOGELNIK et T. LI - App. Opt. 5 (1966) 1550
- 11 A.E. SIEGMAN - An introduction to Lasers and Masers. Mc. Grau Hill Book Compagny (1971)
- 12 C. COHEN-TANNOUDJI - Thèse Paris (1961) - Ann. Physique 7 (1962) 423
- 13 P. AVAN, C. COHEN-TANNOUDJI, J. DUPONT-ROC et C. FABRE - J. Physique 37 (1976) 993
- 14 P.F. LIAO et J.E. BJORKHOLM - Phys. Rev. Lett. 34 (1975) 1
(voir également errata Phys. Rev. Lett. 34 (1975) 1540)
- 15 M. BASSINI - Thèse 3ème cycle Paris (1977)

BIBLIOGRAPHIE - Chapitre II

- 1 D. PRITCHARD, J. APT et T.W. DUCAS - Phys. Rev. Lett. 32, (1974) 641
- 2 F. BIRABEN, B. CAGNAC et G. GRYNBERG - Phys. Rev. Lett. 32, (1974) 643
- 3 M.D. LEVENSON et N. BLOEMBERGEN - Phys. Rev. Lett. 32, (1974) 645
- 4 T.W. HANSCH, K. HARVEY, G. MEISEL et A.L. SCHALOW - Opt. Comm. 11, (1974) 50
- 5 J.W. BERTHOLD, S.F. JACOBS et M.A. NORTON - App. Opt. 15, (1976) 1898
- 6 P. KUSCH, S. MILLMAN et I. RABI - Phys. Rev. 35, (1939) 1176
- 7 M. PHILIPS - Phys. Rev. 44, (1933) 644
- 8 G. GRYNBERG - Thèse Paris (1976) p. 82-88-97-165-171
- 9 P.K. SHENK et H.S. PILLOFF - Communication à l'Atomic Physics Symposium Washington (1975)
- 10 F. BIRABEN, B. CAGNAC et G. GRYNBERG - Phys. Lett. 48A, (1974) 469
- 11 R.N. MEISSNER et R.F. LUFT - Ann. Phys. (Leipzig) 29, (1937) 698
- 12 J.E. BJORKHOLM et P.F. LIAO - Phys. Rev. Lett. 33, (1974) 128
- 13 K. FREDRIKSON et S. SVANBERG - Phys. Lett. 53A, (1975) 61
- 14 H.T. DUONG, S. LIBERMAN, J. PINARD et J.L. VIALLE - Phys. Rev. Lett. 33, (1974) 339
- 15 F. BIRABEN - Thèse de 3ème cycle Paris (1974)
- 16 P. TSEKERIS, K.H. LIAO et R. GUPTA - Phys. Rev. A 13, (1976) 2309
- 17 F. KARSTENSEN et J. SCHRAMM - Zeit. Phys. 195, (1966) 370
- 18 D. KAISER - Phys. Lett. 51A, (1975) 375
- 19 A.R. STRIGANOV et N.S. SVENTITSKII - Tables of Spectral Lines of Neutral and Ionized Atoms - IFI/PLENUM - New-York - Washington. (1968)

BIBLIOGRAPHIE - Chapitre III

- 1 C. COHEN-TANNOUJDI - Cargèse, Lectures on Physics (Gordon and Breach)
S. HAROCHE - Thèse, *Annls de Phys.* 6 (1971) 189-327 (1967)
- 2 B. CAGNAC, G. GRYNBERG et F. BIRABEN - *J. Physique* 34 (1973) 845
- 3 G. GRYNBERG - Thèse Paris (1976)
- 4 B.W. SHORE et P.H. MENZEL - Principles of Atomic Spectra
(J. Wiley and Sons) (1968) 445
- 5 W. HEITLER - The quantum theory of radiation (Clarendon Press) (1954) 201
- 6 C. COHEN-TANNOUJDI, F. HOFBECK et S. REYNAUD - A paraître
- 7 F. SHUDA, C.R. STROUD, Jr et M. HERCHER - *J. Phys. B* 7 (1974) L 198
F.Y. WU, R.E. GROVE et S. EZEKIEL - *Phys. Rev. Letters* 35 (1975) 1426
H. WALTHER - Proc. 2nd Int. Laser Spectroscopy Conf. Megève, 1975
(Springer, Berlin, 1975)
- 8 P. KUSCH, S. MILLMAN et I. RABI - *Phys. Rev.* 35 (1939) 1176
H.T. DUONG, P. JACQUINOT, S. LIBERMAN, J.L. PICQUE, P. PINARD et
J.L. VIALLE - *Opt. Commun.* 7 (1973) 371
- 9 A. MESSIAH - Mécanique quantique (Dunod) - Appendice C, formule 89
- 10 J.L. CARLSTEN et A. SZOKE - *Phys. Rev. Lett.* 36 (1976) 667

BIBLIOGRAPHIE - Chapitre IV

- 1 A. OMONT - J. Physique 34 (1973) 179
- 2 A. OMONT - Prog. Quantum Electronics, Vol 5, p. 69-138 - Pergamon Press, 1977
- 3 R.H. DICKE - Phys. Rev. 89 (1953) 472
- 4 E. GIACOBINO - Thèse Paris (1976) - Chapitre IV
- 5 J. FIUTAK et J. Van KRANENBONK - Can. J. Phys. 40 (1962) 1085
- 6 J.P. FAROUX - Thèse Paris (1969-) - Chapitre IV
- 7 A. MESSIAH - Mécanique quantique (Dunod) - Appendice C
- 8 SURRUGUE - Techniques générales du laboratoire de physique - Editions du CNRS
- 9 D.G. Mc CARTAN et J.M. FARR - J. Phys. B 9 (1976) 985

BIBLIOGRAPHIE - Chapitre V

- 1 G. MEUNIER - Thèse de 3ème cycle Paris (1975)
- 2 A. MESSIAH - Mécanique quantique (Dunod) - Appendice C
- 3 D. DILLY - Thèse de 3ème cycle Paris (1970)
- 4 A. OMONT - Prog. Quantum Electronics, Vol 5, p. 69-138 - Pergamon Press (1977)
- 5 W.L. WIESE, M.W. SMITH et B.M. MILES - Atomic Transition Probabilities NBS
- 6 J.C. LEHMANN - Thèse Paris (1966)
- 7 M. PAVLOVIC et F. LALOE - J. Phys. 31 (1970) 173
- 8 Y. ARCHAMBAULT, J.P. DESCOUBES, M. PRIOR, A. OMONT et J.C. PEBAY-PEYROULA
J. Phys. Radium 21 (1960) 677
- 9 H. KOPFERMAN - Nuclear Moments, Academic Press, New-York (1958)
- 10 P.K. SHENK et H.S. PILLOFF - Communication à l'Atomic Physic Symposium,
Washington (1975)
- 11 R. ROMESTAIN - Thèse Paris (1972)
- 12 W. HANLE - Z. f. Phys. 30 (1934) 93
- 13 D. KAISER - Phys. Lett 51A (1975) 375
- 14 F. KARSTENSEN et J. SCHRAMM - Zeit. Phys. 195 (1966) 370
- 15 J.P. FAROUX - Thèse Paris (1969)
- 16 J. BUTAUX - Thèse Paris (1972)

BIBLIOGRAPHIE - Chapitre VI

- 1 J. PASCALE et J. VANDEPLANQUE - J. Chem. Phys. 60 (1974) 2278
- 2 J.P. FAROUX - Thèse Paris (1969)
- 3 A. OMONT - Prog. Quantum Electronics 5 (1977) 69
- 4 A. OMONT - J. Physique 34 (1973) 179
- 5 A. MESSIAH - Mécanique quantique (Dunod)
- 6 J.C. GAY et A. OMONT - J. Physique 35 (1974) 9
- 7 F. SCHULLER et W. BEHMENBURG - Physics Reports 12C (1974) 275
- 8 B. CAGNAC et J.C. PEBAY-PEYROULA - Physique atomique II - p. 318
- 9 A. DALGARNO et A.E. KINGSTON - Proc. Roy. Soc. (London) A 259 (1961) 424
- 10 W.E. BAYLIS - J. Chem. Phys. 51 (1969) 2665
- 11 H. MARGENAU et N.R. KESTNER - Theory of Intermolecular Forces - Pergamon Press
- 12 J.F. KIELKOPF et R.B. KNOLLENBERG - Phys. Rev. A 12 (1975) 559
- 13 J.I. GERSTEN - Phys. Rev. A 14 (1976) 1354
- 14 R.E. OLSON - Phys. Rev. A 15 (1977) 631

BIBLIOGRAPHIE - Conclusion

- 1 F. BIRABEN, E. GIACOBINO et G. GRYNBERG - Phys. Rev. A 12 (1975) 2444
- F. BIRABEN, G. GRYNBERG, E. GIACOBINO et J. BAUCHE - Phys. Lett. 56 A (1976) 441
- G. GRYNBERG, F. BIRABEN, E. GIACOBINO et B. CAGNAC - Opt. Commun. 18 (1976) 374
- E. GIACOBINO, F. BIRABEN, G. GRYNBERG et B. CAGNAC - J. Phys. 38 (1977) 623
- G. GRYNBERG, F. BIRABEN, E. GIACOBINO et B. CAGNAC - J. Phys. 38 (1977) 629

BIBLIOGRAPHIE - Appendices

Appendice A

- 1 W. HEITLER - The quantum theory of radiation (Oxford - 1960)

Appendice C

- 1 D. DILLY - Thèse 3ème cycle
- 2 G. GRYNBERG - Thèse Paris (1976)
- 3 J.P. FAROUX - Thèse Paris (1969)
- 4 A. MESSIAH - Mécanique quantique (Dunod)

Appendice D

- 1 J.P. FAROUX - Thèse Paris (1969)
- 2 H. MARGENAU et N.R. KESTNER - Theory of Intermolecular Forces - Pergamon Press