



**HAL**  
open science

# Pompage optique d'atomes métastables, effets de sélectivité en vitesses induits par un laser monomode

Lucile Julien

► **To cite this version:**

Lucile Julien. Pompage optique d'atomes métastables, effets de sélectivité en vitesses induits par un laser monomode. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1981. Français. NNT: . tel-00011836

**HAL Id: tel-00011836**

**<https://theses.hal.science/tel-00011836>**

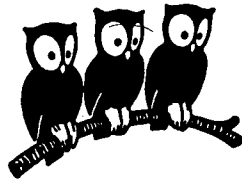
Submitted on 8 Mar 2006

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

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

UNIVERSITÉ DE PARIS

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

Lucile JULIEN

pour obtenir  
le grade de DOCTEUR - ES - SCIENCES

Sujet de la thèse : "POMPAGE OPTIQUE D'ATOMES METASTABLES ; EFFETS  
DE SELECTIVITE EN VITESSES INDUITS PAR UN  
LASER MONOMODE".

Soutenue le 2 Décembre 1981 devant le Jury :

MM. J. BROSSEL

Président

C. COHEN-TANNOUJDI )  
F. LALOË )  
J.C. LEHMANN ✕ )  
M. LOMBARDI )  
J. MARGERIE ✕ )

Examineurs

THESE DE DOCTORAT D'ETAT

ès Sciences Physiques

présentée à

l'Université Pierre et Marie Curie

(Paris VI)

par

Lucile JULIEN

=====

pour obtenir

le grade de DOCTEUR - ES - SCIENCES

Sujet de la thèse : "POMPAGE OPTIQUE D'ATOMES METASTABLES ; EFFETS  
DE SELECTIVITE EN VITESSES INDUITS PAR UN  
LASER MONOMODE"

Soutenu le 2 Décembre 1981 devant le Jury :

MM. J. BROSEL

Président

C. COHEN-TANNOUJJI )

F. LALOE )

J.C. LEHMANN )

Examineurs

M. LOMBARDI )

J. MARGERIE )

Le travail présenté dans ce mémoire a été réalisé pendant les années 1976 - 1981 au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure. Je tiens tout d'abord à remercier Messieurs les Professeurs A. KASTLER et J. BROSSEL qui, en m'accueillant dans leur laboratoire, m'ont permis de bénéficier des meilleures conditions matérielles et intellectuelles.

L'expérience décrite dans la première partie de ce mémoire a été réalisée dans la partie du laboratoire située à la "Halle aux Vins". Je voudrais remercier ici Jean-Pierre DESCOUBES qui a suivi ce travail et qui a dirigé mes premières années dans la recherche, ainsi que les chercheurs et les techniciens de la "Halle aux Vins" qui m'ont tous durant ces années prodigué leur aide amicale et leur soutien. Je suis reconnaissante en particulier à Francis TREHIN qui m'a apporté une aide très précieuse dans la réalisation et la mise au point du banc de pompage.

Le travail décrit dans la deuxième partie de ce mémoire a été réalisé rue Lhomond, à partir de 1979, en collaboration avec Michel PINARD. Franck LALOË en a assumé la direction ; il nous a donné de nombreux conseils, lors de discussions très fructueuses, et il a su nous guider aussi bien en nous proposant de nouvelles expériences qu'en nous suggérant des améliorations du montage utilisé. Je tiens à lui exprimer ici ma profonde reconnaissance.

J'ai eu la très grande chance de travailler pendant ces années en collaboration avec Michel PINARD. Il m'a fait bénéficier de son expérience, aussi bien expérimentale que théorique dans le domaine du pompage optique sélectif en vitesses, et j'ai pu apprécier quotidiennement sa gentillesse et son dynamisme. Je tiens à lui dire ici combien cette collaboration a été agréable et stimulante pour moi, et à l'assurer de toute mon amitié. Je suis contente également de pouvoir dire ici aux chercheurs et aux techniciens de la rue Lhomond combien j'ai apprécié l'accueil chaleureux que j'ai reçu parmi eux.

Je remercie vivement Messieurs C. COHEN-TANNOUJJI, J.C. LEHMANN, J. MARGERIE et M. LOMBARDI de l'intérêt qu'ils ont manifesté pour cette thèse en acceptant de participer au Jury.

Je voudrais dire enfin ma reconnaissance à tous ceux qui ont contribué à la réalisation matérielle de ce mémoire : parmi eux, je citerai Madame BOUNIOL, Mademoiselle BRODSCHI et Madame RENOU qui se sont partagé la frappe du texte, Madame AUDOIN pour le tirage, Madame MOISSENET, Madame ROBIN et Monsieur AUQUIER pour la réalisation des figures et des photos. Je tiens à les remercier tous pour leur gentillesse et leur grande efficacité.

## TABLE DES MATIÈRES

Introduction .....	1
<b><u>PREMIERE PARTIE : POMPAGE OPTIQUE DU NIVEAU METASTABLE <sup>5</sup>S DE L'OXYGENE</u></b>	
I. Généralités .....	5
1) Intérêt général de l'oxygène .....	5
2) Les niveaux d'énergie de l'atome d'oxygène ; importance des niveaux métastables .....	5
3) Observations et expériences concernant le métastable <sup>5</sup> S .....	7
4) Le pompage optique, méthode d'étude des collisions .....	8
II. L'expérience de pompage optique de O( <sup>5</sup> S) : problèmes spécifiques rencontrés .....	10
1) Principe de l'expérience .....	10
2) Production du métastable <sup>5</sup> S .....	10
3) La source lumineuse à 7773 Å .....	12
4) Effets parasites liés au champ magnétique .....	13
III. Dispositif expérimental .....	13
1) La cellule et le banc de pompage .....	13
2) Le blindage magnétique .....	15
3) La lampe à décharge .....	15
4) Le laser à colorant .....	15
5) Les champs magnétiques appliqués .....	16
6) La décharge et le montage optique .....	16
7) Le dispositif de détection .....	17
IV. Résultats .....	18
1) Pompage optique avec une lampe à décharge .....	18

a) Caractéristiques de la résonance magnétique observée ...	18
b) Etude systématique de la largeur de la résonance .....	19
c) Limites de la méthode .....	20
2) Pompage optique avec un laser à colorant .....	21
a) Signaux de résonance magnétique .....	21
b) Interprétation physique .....	21
V. Conclusion .....	22

DEUXIEME PARTIE : POMPAGE OPTIQUE SELECTIF EN VITESSES DES METASTABLES DU NEON

Introduction .....	24
<u>CHAPITRE A : GENERALITES</u> .....	25
I. Pompage optique avec un laser monomode .....	25
1) Sélectivité en vitesses .....	25
2) Régime d'évolution des atomes sous l'effet du pompage .....	26
3) Autres causes d'évolution .....	27
II. Montage expérimental .....	28
1) Le choix des métastables du néon ; la cellule .....	28
2) Le laser .....	30
<u>CHAPITRE B : POMPAGE OPTIQUE SELECTIF EN VITESSES (V.S.O.P.) A 1 FAISCEAU</u> .	31
I. Présentation de la méthode .....	31
1) Géométrie expérimentale .....	31
2) Allure générale des signaux .....	32
3) Rappel théorique .....	33
4) Interprétation de quelques courbes expérimentales .....	37
II. Expériences de pompage optique modulé .....	41
1) Principe .....	41
2) Résultats expérimentaux .....	43
III. Mesure de la structure hyperfine du niveau $2p_9$ du $^{21}\text{Ne}$ ; déplacements isotopiques des raies à 6402 Å et 6266 Å .....	46

1) Introduction .....	46
2) Dispositif expérimental .....	47
3) Structure des spectres obtenus .....	48
4) Dépouillement des spectres et résultats .....	50
a) Identification des résonances .....	50
b) Mesure des structures hyperfines .....	53
c) Mesure des déplacements isotopiques .....	56
<b>CHAPITRE C : POMPAGE OPTIQUE DOUBLEMENT SELECTIF EN VITESSES</b> .....	<b>58</b>
<b>Introduction</b> .....	<b>58</b>
<b>I. Principe de la méthode</b> .....	<b>59</b>
1) Double sélection en vitesses .....	59
2) Pompage optique à deux faisceaux .....	60
3) Exemple simple .....	61
<b>II. Calcul général des effets de pompage optique à deux faisceaux</b> .....	<b>64</b>
1) Position du problème .....	64
2) Equations d'évolution de l'opérateur densité .....	65
a) Rappel : pompage optique à un faisceau .....	65
b) Cas de deux faisceaux .....	68
3) Etude du régime stationnaire .....	69
a) Cas simple .....	69
b) Cas général - décomposition sur une base d'opérateurs tensoriels irréductibles .....	71
c) Résolution des équations par itération - effets de pom- page croisé .....	76
4) Calcul du signal détecté .....	86
a) Généralités .....	86
b) Intégration sur les vitesses .....	88
c) Effet du signal symétrique .....	91
d) Etude de la largeur en fréquence des signaux .....	92
<b>III. Expériences</b> .....	<b>96</b>
1) Dispositif expérimental .....	96

a) Le montage optique .....	97
b) L'électronique de détection .....	98
2) Résultats .....	99
a) Généralités .....	99
b) Etude du signal principal .....	100
c) Autres signaux observés .....	103
Conclusion du chapitre C .....	105
<u>CHAPITRE D : DETECTION OPTOGALVANIQUE DU POMPAGE OPTIQUE</u> .....	106
I. Introduction .....	106
II. Origines possibles des signaux .....	110
III. Dispositif expérimental .....	114
IV. Expériences réalisées avec un faisceau de pompage .....	115
1) Faisceau d'intensité modulée .....	115
2) Faisceau de polarisation modulée .....	116
V. Expériences réalisées avec deux faisceaux de pompage .....	120
1) Détection d'observables électroniques .....	121
2) Détection d'observables nucléaires .....	123
VI. Conclusion du chapitre D .....	125
<u>CONCLUSION</u> .....	126
<u>APPENDICES</u>	
<u>REFERENCES</u>	



## INTRODUCTION

Depuis une vingtaine d'années, les méthodes du pompage optique, de double résonance, de croisements de niveaux, etc..., qui s'appliquent aussi bien aux niveaux atomiques fondamentaux ou métastables qu'aux niveaux excités, ont été appliquées à un grand nombre d'études de physique atomique et moléculaire [1][2][3].

Dans un premier temps, les sources lumineuses utilisées ont été des lampes à décharge dont la largeur spectrale est relativement grande ou au moins comparable à la largeur Doppler des transitions optiques considérées. De telles sources lumineuses, que nous appellerons "sources classiques", ont cependant leurs limitations. D'une part, il est parfois difficile d'obtenir des décharges intenses dans certains gaz (l'oxygène et le xénon pur par exemple) sans recourir à des montages expérimentaux élaborés. D'autre part, certaines raies atomiques ne sont émises qu'avec des intensités relatives très faibles (c'est en général d'autant plus vrai que les niveaux de la transition sont fortement excités). Ces limitations ont restreint pendant plusieurs années le champ d'application des méthodes du pompage optique à quelques niveaux d'un certain nombre d'atomes comme le mercure (et les éléments de la même colonne du tableau périodique des éléments), les alcalins, les gaz rares (dont les niveaux métastables sont facilement peuplés par décharge), etc... Une grande quantité de résultats se rapportant à ces atomes a été ainsi obtenue, souvent en associant la résonance magnétique à la méthode du pompage optique : spectroscopie, étude des processus collisionnels associés aux niveaux étudiés, etc...

Certains atomes, de structures plus complexes, mais présentant cependant un grand intérêt, n'avaient pas jusqu'à présent été étudiés par cette méthode. Des difficultés expérimentales spécifiques doivent en effet être résolues pour leur appliquer la méthode du pompage optique, difficultés qui ont trait à la production de ces espèces atomiques dans un niveau susceptible d'être pompé optiquement ainsi qu'à la fréquence et à l'intensité de la source lumineuse nécessaire. Citons parmi eux l'oxygène

et l'azote atomique, dont l'intérêt provient de leur présence dans l'atmosphère terrestre et de leur rôle important dans les réactions chimiques qui y ont lieu.

La mise au point de lasers accordables, en particulier des lasers à colorants [4], en apportant une solution nouvelle aux difficultés citées plus haut, a permis d'étendre considérablement le champ d'application des méthodes de pompage optique classiques. On dispose maintenant de sources puissantes dans de grandes gammes de longueur d'onde : des niveaux atomiques beaucoup plus nombreux sont ainsi accessibles au pompage optique et l'efficacité du pompage est grandement accrue du fait des intensités parfois élevées qui sont devenues disponibles.

Cependant, l'intensité et la possibilité d'accord en fréquence n'est pas la seule caractéristique originale des lasers par rapport aux sources classiques. Les propriétés spectrales de la lumière qu'ils émettent peuvent également être la cause d'effets nouveaux ayant trait à la réponse du système atomique à l'excitation lumineuse. En particulier, la possibilité d'obtenir des lasers monomodes rend accessible au pompage optique un nouveau champ de recherche : résolution des phénomènes physiques se produisant à l'intérieur de la largeur Doppler des transitions utilisées, introduction de corrélations entre variables internes et variables externes des atomes, relaxation collisionnelle de ces corrélations, etc...

Nous présentons dans ce mémoire différentes expériences où ces deux types de possibilités nouvelles offertes par les lasers ont été exploitées. Elles portent sur le pompage optique de niveaux métastables atomiques peuplés dans une décharge gazeuse. Dans un premier temps, nous avons appliqué la méthode du pompage optique au niveau métastable  $^5S$  de l'oxygène atomique, en utilisant comme source lumineuse, d'abord une lampe à décharge, puis un laser à colorant. Cette expérience, portant sur un niveau atomique peu étudié auparavant, nous a permis d'obtenir des renseignements sur les processus de relaxation de l'orientation électronique dans ce niveau. Dans un deuxième temps, nous avons effectué des expériences de pompage optique des métastables du néon avec un laser monomode (pompage optique sélectif en vitesses). Réalisées avec un faisceau de pompage unique, ces expériences ont débouché sur des études collision-

nelles et spectroscopiques. Nous les avons généralisées au cas de deux faisceaux de pompage; nous avons pu ainsi, grâce à l'observation d'effets de pompage croisés, sélectionner deux composantes de la vitesse des atomes (pompage optique doublement sélectif en vitesses). Nous avons d'autre part utilisé une méthode optogalvanique pour détecter les effets du pompage optique sélectif en vitesses. Cette méthode de détection a fait l'objet d'études très nombreuses au cours des dernières années en raison du très bon rapport signal sur bruit qu'elle fournit dans de nombreux cas. Il nous a semblé intéressant de montrer qu'elle se prêtait également à la détection d'observables spécifiques au pompage optique telles que l'orientation et l'alignement (électroniques ou nucléaires) des atomes.

Le plan de notre mémoire est le suivant :

- La première partie est consacrée au pompage optique du niveau métastable  $^5S$  de l'oxygène atomique. Après des généralités concernant l'atome d'oxygène et ses niveaux ainsi que la méthode du pompage optique (§ I), les problèmes spécifiques à la réalisation de l'expérience sont discutés (§ II). Le dispositif expérimental est décrit dans le § III, et les résultats obtenus présentés et discutés dans le § IV.

- La deuxième partie est consacrée au pompage optique sélectif en vitesses des niveaux métastables du néon.

Dans le chapitre A, les conditions générales dans lesquelles sont faites ces expériences de pompage optique avec un laser monomode sont exposées, et les éléments du montage expérimental sont décrits.

Dans le chapitre B, nous présentons des expériences réalisées avec un faisceau de pompage unique : après des considérations sur la géométrie expérimentale utilisée et sur les signaux obtenus dans ces conditions (§ I), on décrit l'application de cette méthode d'une part à l'étude des collisions  $Ne^*-Ne$  et  $Ne^*-He$  (§ II), d'autre part à des mesures spectroscopiques sur le  $^{21}Ne$  (§ III).

Le chapitre C est consacré à la description des expériences effectuées avec deux faisceaux de pompage non colinéaires (pompage optique doublement sélectif en vitesses). Après avoir indiqué les caractéristiques spécifiques d'une telle méthode (§ I), on calcule les signaux de pompage optique croisé qu'elle permet d'obtenir (§ II). Les expériences réalisées sont décrites dans le § III.

Enfin, dans le chapitre D, sont présentés et analysés les résultats que nous avons obtenus dans une expérience de détection optogalvanique des effets du pompage optique.

PREMIÈRE PARTIE :

---

POMPAGE OPTIQUE DU NIVEAU MÉTASTABLE  $^5S$   
DE L'OXYGÈNE ATOMIQUE

## POMPAGE OPTIQUE DU NIVEAU MÉTASTABLE <sup>5</sup>S DE L'OXYGÈNE ATOMIQUE

### I. GENERALITES

#### 1) Intérêt général de l'oxygène

L'oxygène est l'élément le plus répandu de notre environnement terrestre. Il est présent sous forme de composés dans les roches (il représente près de 50% de la masse de la croûte terrestre), dans l'eau, dans les organismes vivants.

L'oxygène moléculaire O<sub>2</sub>, l'un des constituants de l'air (près de 20% en volume), y joue un rôle très important. Très réactif, il intervient entre autres dans les combustions, en particulier dans celles qui sont nécessaires à la vie (respiration) (\*).

L'oxygène sous forme atomique est également abondant dans la nature. On sait qu'il est présent en quantités importantes dans la haute atmosphère (autour de 100 km d'altitude), et qu'il y joue un rôle de stockage de l'énergie solaire (l'énergie de recombinaison moléculaire de deux atomes est de l'ordre de 5 eV). De plus, des raies émises par l'atome d'oxygène ont été observées dans un certain nombre d'étoiles. En raison de son importance et de sa réactivité, l'atome d'oxygène est donc particulièrement intéressant à étudier.

#### 2) Les niveaux d'énergie de l'atome d'oxygène; importance des niveaux métastables

L'atome d'oxygène possède 8 électrons. La figure 1 présente schématiquement quelques uns de ses niveaux d'énergie.

---

(\*) L'oxygène existe aussi sous forme moléculaire O<sub>3</sub> (ozone) dans la stratosphère; il protège la surface terrestre des rayonnements ultraviolets de courte longueur d'onde ( $\lambda < 0,3 \mu$ ).

La configuration fondamentale  $1s^2 2s^2 2p^4$  comprend le niveau fondamental  $^3P$  et deux niveaux métastables  $^1D$  et  $^1S$ , situés respectivement à 2,0 eV et 4,2 eV au-dessus du fondamental.

Le niveau  $^1S$  a une durée de vie d'environ 1 s. et se désexcite spontanément en émettant la raie quadrupolaire électrique  $^1S \rightarrow ^1D$  de longueur d'onde 5577 Å. Il s'agit de la fameuse raie verte de l'oxygène, observée depuis longtemps dans le spectre des aurores polaires (d'où son nom de raie aurorale).

Cette raie est de plus la raie atomique la plus intense émise par le ciel nocturne, ce qui, compte tenu de la durée de vie du niveau  $^1S$ , indique un taux de formation important, dans la haute atmosphère, d'atomes d'oxygène dans ce niveau, même en l'absence de rayonnement solaire.

La nature de la réaction chimique, qui produit continuellement ces atomes d'oxygène dans l'état  $^1S$ , a été longtemps controversée [5]. Il est sûr que la source d'énergie correspondante est la présence en quantités importantes [22] d'oxygène atomique produit pendant le jour par la dissociation de molécules sous l'action du rayonnement solaire (l'oxygène atomique joue le rôle de véritable réservoir d'énergie) (\*).

On sait depuis quelques années produire la raie verte de l'oxygène atomique en laboratoire et étudier ainsi les processus responsables de son émission [6].

Le niveau  $^1D$  a une durée de vie beaucoup plus longue que le  $^1S$  (plusieurs minutes), et la raie rouge qu'il émet (raie double à 6300 et 6364 Å) a un intérêt principalement astrophysique (\*\*).

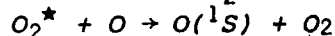
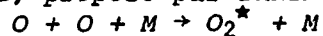
---

(\*) Deux processus différents ont été envisagés. Le plus simple, proposé par CHAPMAN en 1931, fait intervenir trois atomes dans l'état fondamental  $^3P$  :



(l'énergie de dissociation de la molécule  $O_2$  est de 5,2 eV).

Le deuxième, proposé par BARTH en 1962, est un processus en deux étapes :



où M est une molécule d'oxygène ou d'azote.

Des mesures récentes, faites in situ, de l'émission de la raie atomique à 5577 Å et des bandes moléculaires de  $O_2^*$ , montrent que le deuxième processus est responsable de la production de  $O(^1S)$  et que le niveau moléculaire excité intermédiaire est  $O_2(A^3\Sigma_u^+)$  [23].

(\*\*) Observée d'abord dans le spectre des nébuleuses, cette raie double (dite raie nébulaire) a depuis été observée dans l'émission du ciel nocturne ainsi que dans celle d'un certain nombre d'étoiles. Comme la raie verte, on sait maintenant la produire au laboratoire [18].

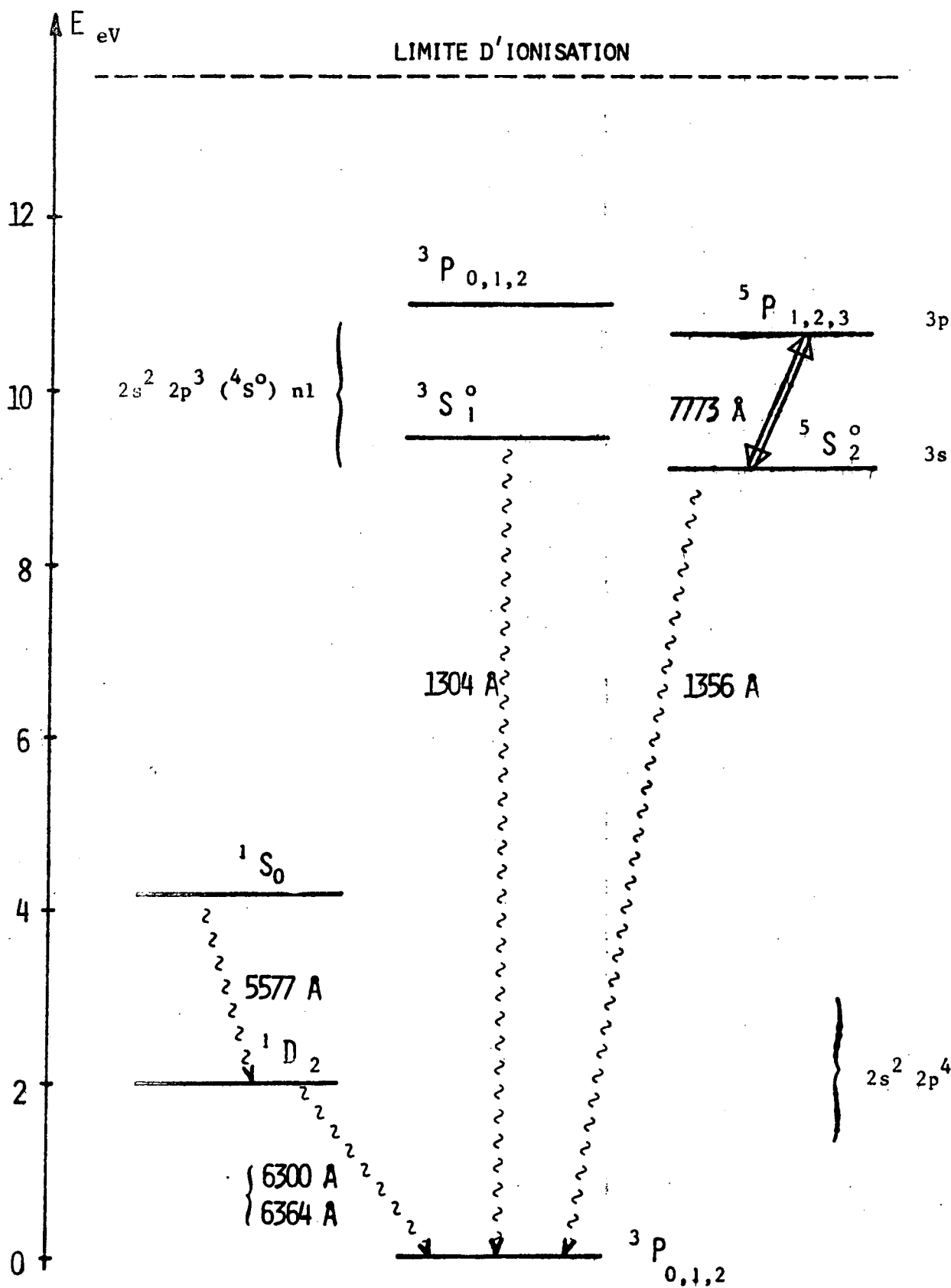


Figure 1 : Niveaux d'énergie de l'atome d'oxygène.



Les niveaux d'énergie plus excités de l'atome d'oxygène peuvent être décrits comme ceux d'un coeur  $2s^2 2p^3$  donnant lieu aux termes spectraux ( $^4S^0$ ), ( $^2P^0$ ) ou ( $^2D^0$ ), autour duquel gravite un électron externe  $n\ell$ . Le coeur le plus stable correspond à un état ( $^4S^0$ ), et les niveaux excités formés à partir de lui sont de deux sortes : des triplets et des quintuplets.

Le niveau quintuplet de plus basse énergie  $3s(^5S_2^0)$  (\*) est métastable, en raison de la règle de sélection  $\Delta S = 0$  des transitions dipolaires électriques. Il est situé à 9,14 eV au-dessus du fondamental. Sa durée de vie radiative mesurée expérimentalement [7][8][9] est de 0,18 ms. Il se désexcite, en émettant un photon à 1356 Å, par une transition dipolaire électrique : il est en effet mélangé, par couplage  $\vec{L}\vec{S}$ , avec le sous-niveau  $^3P_2^0$  de structure fine du niveau  $3s(^3P^0)$  de coeur ( $^2P^0$ ) (ce niveau autoionisant est situé 0,5 eV au-dessus de la limite d'ionisation associée au coeur ( $^4S^0$ ) dont l'énergie d'ionisation est de 13,6 eV). Le calcul de durée de vie correspondant [10] est en bon accord avec les données expérimentales.

Le niveau  $3s(^5S_2^0)$  est relié au niveau supérieur  $3p(^5P)$  par la triple transition à 7773 Å correspondant aux 3 niveaux de structure fine de ce dernier. La force d'oscillateur de cette transition est grande, presque égale à 1 [11]. Le niveau ( $^5P$ ) ne peut se désexciter, par émission spontanée, que par cette voie.

### 3) Observations et expériences concernant le métastable $^5S$

L'intérêt porté au niveau métastable  $^5S$  de l'atome d'oxygène est récent. Sa présence dans l'atmosphère terrestre est maintenant démontrée. L'observation du rayonnement émis par celle-ci à 1356 Å a été faite non seulement au sol, en particulier lors des aurores boréales ou australes, mais également par satellite [9]. L'importance de ce rayonnement tend à indiquer que, comme les métastables  $^1D$  et  $^1S$ , le métastable  $^5S$  joue un rôle dans les réactions chimiques qui ont lieu dans la haute atmosphère.

D'autre part, l'émission de la raie triple à 7773 Å par un certain nombre d'étoiles, en particulier par le soleil [12], est connue depuis longtemps. Observée dès 1925 par MERRIL [13], cette émission a depuis

---

(\*) Le signe  $^0$  (odd), qui indique qu'une configuration électronique est décrite par une fonction d'onde impaire par changement de  $r$  en  $-r$ , sera omis par la suite.

été mise en évidence dans un grand nombre d'étoiles géantes où elle est très intense [14]. Son étude peut conduire à différentes déterminations de caractéristiques de l'étoile : température, concentration en oxygène, etc...

La première mise en évidence de la production du métastable  $^5S$  en laboratoire a été faite en 1967 par BRINK qui utilisait une décharge microonde appliquée à un jet moléculaire d'oxygène ou de mélange hélium-oxygène [15]. Depuis, ce métastable a été étudié en laboratoire par différentes équipes : il était produit soit par décharge, soit par bombardement électronique de molécules ( $O_2$ ,  $CO$ ,  $CO_2$ ,  $H_2O$ ) [16][17][18]. On a ainsi pu obtenir des jets d'atomes dans l'état métastable  $^5S$  et mesurer avec précision sa durée de vie ( $\tau = 180 \pm 5 \mu s$  [9]) et son facteur de Landé ( $g = 2,002091$  [19]).

Cependant, peu d'études ont été menées concernant les collisions dans lesquelles intervient le  $^5S$ . A notre connaissance, deux équipes seulement ont publié des résultats à ce sujet. RÖTH et al. [20] ont étudié, par spectroscopie d'absorption, le "quenching" du  $^5S$  dans des mélanges contenant de fortes pressions, soit de gaz rares, soit de diverses molécules. De plus, depuis quelques années, de nombreuses publications ont été faites concernant le transfert d'excitation du  $^5S$  au  $^3S$  voisin, observé sur la fluorescence de ces deux niveaux, lors de la collision d'un jet de métastables sur une cible gazeuse de molécules ( $O_2$ ,  $N_2$ ) ou de gaz rares ([21] et publications précédentes).

#### 4) Le pompage optique, méthode d'étude des collisions

Le nombre limité de travaux portant sur les collisions de l'oxygène atomique dans le niveau  $^5S$ , ainsi que la possibilité d'utiliser la transition  $^5S - ^5P$  pour le pomper optiquement, nous ont amenés à entreprendre une expérience de pompage optique de ce niveau.

Il est en effet possible d'obtenir un grand nombre d'informations sur les différentes sortes de collisions affectant un niveau atomique donné, en utilisant la méthode du pompage optique. Cette possibilité a été largement utilisée par le passé [2][3] mais seulement pour l'étude de certains atomes, en particulier les gaz rares. Par exemple, le pompage optique du niveau  $2^3S_1$  de l'hélium a permis de mesurer différentes sections efficaces de collisions concernant ce niveau : "quenching", trans-

fert d'excitation, dépolarisation, etc... [24][25][26][27].

Rappelons brièvement le principe de la méthode associant le pompage optique à la résonance magnétique. Le pompage optique crée une observable (orientation ou alignement) dans un niveau atomique donné; par la suite, nous nous limiterons à l'exemple de l'orientation. On peut alors effectuer une résonance magnétique dans ce niveau, de façon à détruire sélectivement l'orientation créée. Cette résonance peut être détectée par les modifications de l'intensité de la lumière polarisée absorbée ou émise sur des transitions concernant directement le niveau orienté par pompage. Cette méthode est sélective puisqu'on détecte, dans un champ magnétique donné, la résonance à une fréquence proportionnelle au facteur de Landé du niveau. De plus, la largeur de la résonance renseigne sur la durée de vie de cette orientation, et l'étude de la manière dont elle varie en fonction de différents paramètres (par exemple la pression) permet de remonter aux processus responsables de la destruction de l'orientation. On peut dire que le signal de résonance magnétique, caractérisé par sa position et sa largeur en fréquence, constitue une véritable signature du niveau étudié.

On peut aussi détecter la résonance magnétique sur une transition ne concernant pas directement le niveau pompé, et en conséquence obtenir des renseignements sur les transferts d'orientation induits par collisions. Il peut s'agir de transferts d'un niveau à un autre de la même espèce atomique, ou d'une espèce atomique à une autre, ou même à une molécule (par exemple par recombinaison).

On voit que les possibilités offertes par cette méthode sont très larges.

## II. L'EXPERIENCE DE POMPAGE OPTIQUE DE O(<sup>5</sup>S) : PROBLEMES SPECIFIQUES RENCONTRES

---

### 1) Principe de l'expérience

Nous avons cherché à réaliser le pompage optique du métastable <sup>5</sup>S de l'oxygène atomique en nous aidant de l'expérience acquise au laboratoire dans le cas du pompage optique des niveaux métastables des gaz rares. En effet, le principe de l'expérience [28] [29] est tout à fait analogue. Les atomes dans l'état métastable sont produits dans une cellule où est entretenue une décharge faible. Ils sont placés dans un champ magnétique directeur et orientés par pompage optique avec la raie <sup>5</sup>S-<sup>5</sup>P à 7773 Å polarisée circulairement. Un champ magnétique de radiofréquence induit la résonance magnétique dans le niveau métastable. Le passage à la résonance est détecté par la modification qui en résulte sur l'intensité lumineuse absorbée par les atomes à 7773 Å, ou encore sur l'intensité de la lumière émise à cette même longueur d'onde. Dans le cas de la transition considérée, le niveau excité ne peut retomber par fluorescence que sur le niveau métastable de départ : les deux niveaux forment donc un "système fermé".

Si la transposition à l'oxygène du dispositif classique de pompage optique est en principe simple, certaines difficultés, spécifiques à l'oxygène, ont cependant été rencontrées lors de la réalisation de l'expérience.

### 2) Production du métastable <sup>5</sup>S

L'oxygène étant stable sous forme moléculaire, le rôle de la décharge faible (à 8 MHz) entretenue dans la cellule est double : dissocier les molécules O<sub>2</sub>, peupler le métastable atomique <sup>5</sup>S.

Nous avons effectué différents essais de pression et de composition du gaz contenu dans la cellule, de façon à optimiser la quantité de métastables produits par décharge. La population du métastable était évaluée à l'aide du taux d'absorption de la raie à 7773 Å dans la cellule. Des spectres de la lumière émise par la cellule ont également été enregistrés.

On a ainsi constaté que dans des cellules contenant de l'oxygène pur, celui-ci est très peu dissocié par une décharge faible (il est en fait souvent difficile d'y allumer une décharge). La dissociation est

par contre importante dans les cellules remplies de gaz rares (He ou Ne) dans des pressions de 0,1 à 1 torr. Cependant, le coefficient d'absorption de la raie  $^5S - ^5P$  le plus important que nous ayons obtenu se situe aux alentours de 0,8%, pour une cellule sphérique de 6 cm de diamètre. Cette valeur correspond à une concentration approximative de métastables de  $10^7$  atomes par  $\text{cm}^3$ . Remarquons cependant qu'elle était mesurée pour une cellule contenant 0,5 mtorr d'oxygène et 0,35 torr d'hélium : la proportion d'atomes métastables produits est donc environ de 1 pour  $2 \times 10^6$  molécules de  $\text{O}_2$  présentes, ce qui est du même ordre que le rapport de 1 pour  $10^6$  qu'on obtient pour les gaz rares (nombre d'atomes métastables produits par la décharge comparé au nombre d'atomes introduits).

La particularité de l'oxygène réside non pas dans le fait que le niveau métastable  $^5S$  est très difficile à produire, mais dans celui que l'oxygène doit être introduit en très petites quantités dans la cellule. Cette condition est imposée pour deux raisons : comme nous le verrons plus loin, la présence trop importante d'oxygène est responsable de collisions dépolarisant le métastable  $^5S$ ; d'autre part, la décharge est d'autant plus intense que la quantité d'oxygène est faible. Cette deuxième particularité, qui se manifeste de façon spectaculaire expérimentalement, est liée à la grande électroaffinité de la molécule d'oxygène : les électrons de la décharge sont capturés en partie par les molécules  $\text{O}_2$  (énergie de liaison  $\text{O}_2 - e^-$  : 0,4 eV). Une décharge assez vive, entretenue dans par exemple 0,3 torr d'hélium, est véritablement inhibée par l'introduction trop massive d'oxygène.

Une autre difficulté résulte de la grande réactivité chimique de l'oxygène. Dans un premier temps, nous avons utilisé des cellules scellées en pyrex équipées d'un réservoir de 2 litres. Malgré celui-ci, nous avons constaté que la pression partielle d'oxygène régnant dans la cellule tendait constamment à diminuer. En plus d'une dérive à long terme (quelques semaines), la pression variait pendant le fonctionnement de la décharge pour reprendre à peu près sa valeur initiale après l'arrêt de la décharge. Ces phénomènes, qui n'ont pas été étudiés en détail, ont probablement différentes causes : adsorption plus ou moins momentanée de l'oxygène sur les parois de la cellule, oxydation d'impuretés présentes dans le pyrex, ...

Pour assurer une bonne stabilité de la composition du mélange gazeux contenu dans la cellule et pouvoir mener une étude du signal en fonction de la pression, nous avons été amenés à relier la cellule à un banc de pompage. Après étuvage de la cellule, on a donc pu la remplir d'un mélange de pression et de composition connues et recommencer l'opération de vidage et de remplissage aussi souvent que nécessaire.

### 3) La source lumineuse à 7773 Å

Nous avons utilisé, pour réaliser notre expérience de pompage optique, deux sources lumineuses différentes : dans un premier temps une lampe classique à décharge, dans un deuxième temps un laser à colorant.

La réalisation de lampes à décharges excitées à 2,4 GHz par l'intermédiaire d'une antenne de magnétron est une technique utilisée depuis longtemps dans notre laboratoire, en particulier pour les gaz rares. Cette technique est cependant particulièrement difficile à mettre en oeuvre dans le cas de l'oxygène, pour les mêmes raisons que celles indiquées au paragraphe précédent. La présence d'un gaz "support" de la décharge est obligatoire (ici de l'hélium ou du néon), et même en optimisant au mieux la composition et la pression du mélange He-O<sub>2</sub> contenu dans la lampe, l'intensité lumineuse émise par celle-ci est certainement plus faible que celle que peut émettre une lampe à hélium (ou néon) pur (\*). Remarquons cependant que la raie triple à 7773 Å est la raie de l'oxygène atomique la plus intense qu'une telle lampe émet dans tout le domaine visible.

En plus de son intensité lumineuse limitée, la lampe à décharge présente un autre inconvénient : elle émet simultanément les trois raies de structure fine de la transition <sup>5</sup>P-<sup>5</sup>S difficiles à séparer car elles sont très voisines (longueurs d'onde 7771,9 Å , 7774,2 Å et 7775,4 Å).

L'extension des lasers à colorants dans le domaine de longueurs d'onde qui nous intéresse nous a ouvert la possibilité de disposer d'une source lumineuse ne présentant pas ces deux limitations. Nous verrons

---

(\*) d'autre part, la puissance HF appliquée à la lampe doit être limitée car la lampe a tendance à s'échauffer (risque de fusion du pyrex).

cependant plus loin que l'utilisation de cette nouvelle source pose de nouveaux problèmes liés aux caractéristiques de son spectre d'émission.

#### 4) Effets parasites liés au champ magnétique

Les résultats expérimentaux que nous avons obtenus ont rapidement montré que le temps de relaxation de l'orientation dans le niveau métastable  $^5S$  était proche, dans notre situation expérimentale, de la durée de vie radiative de ce niveau. Celle-ci correspond à une largeur en champ magnétique de la courbe de résonance magnétique de 0,6 mG. Le champ magnétique terrestre était compensé au mieux mais différents effets pouvaient cependant intervenir : un effet d'inhomogénéité du champ magnétique sur le volume de la cellule lié à la présence de sources de champ proches (aimant de magnétron); un effet de fluctuations lentes du champ magnétique présent dans la pièce, ces fluctuations de l'ordre d'une fraction de mG en 1 minute étant responsables de déformations non reproductibles de la courbe de résonance magnétique. Pour éviter ces effets, nous avons donc été amenés à placer la cellule au centre d'un blindage magnétique en  $\mu$ -métal, utilisé précédemment au laboratoire [30].

### III. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

#### 1) La cellule et le banc de pompage

Nous avons utilisé une cellule sphérique en pyrex de diamètre 6 cm, reliée, par l'intermédiaire d'un tube capillaire ( $\phi \approx 1$  mm, long. 1 cm), à un réservoir dont le volume est d'environ 3 litres. Ce réservoir, terminé par une jonction verre-métal, est solidaire du banc de pompage qui permet le vidage et le remplissage de la cellule.

Le schéma de principe du banc de pompage est donné sur la figure 2. Nous avons utilisé un ensemble de deux pompes Edwards : une pompe à palettes EDM 12, et une pompe à diffusion ("Diffstack" 100/300 M) dont le débit est de 280 l/s et le vide limite de quelques  $10^{-8}$  torr. Le pompage de la cellule se fait essentiellement à travers des canalisations en inox de diamètre 38 mm. Un piège à azote liquide protège tout le système pompé d'une éventuelle rétrodiffusion d'huile. Une jauge de type Bayard-Alpert permet de contrôler le bon fonctionnement de la pompe secondaire. La pression de remplissage de la cellule est mesurée

avec une précision qui peut aller jusqu'à  $2 \times 10^{-5}$  torr par un manomètre capacitif de type Baratron (modèle MKS 170 M). Il s'agit ici d'une mesure différentielle effectuée la vanne VV1 étant fermée, de façon à ce qu'un bon vide secondaire soit maintenu au-dessous d'elle.

Contrairement aux vannes VV1 et VV2 (vannes à joints viton Riber), la vanne VME est une vanne entièrement métallique et donc étuvable. Avant utilisation, la cellule, maintenue sous vide secondaire, est placée dans une étuve où elle est chauffée 24 h. à 350°C. La vanne VME ainsi que le soufflet S (qui permet de conserver un jeu mécanique au niveau de la cellule) sont portés, pendant le même temps, à 250°C par un cordon chauffant (\*). Après ces traitements, le dégazage observé au niveau de l'ensemble isolé cellule + VME est très limité : moins de  $2 \times 10^{-5}$  torr en 24 h.

Les gaz utilisés pour le remplissage de la cellule sont des gaz très purs commercialisés par l'Air Liquide sous forme de cartouches. Les canalisations du système de remplissage sont soigneusement vidées par pompage secondaire toutes vannes ouvertes (\*\*). Puis, vannes fermées, une petite quantité de gaz est prélevée par ouverture d'une cartouche. Elle est ensuite détendue dans un sas où la pression est contrôlée par une jauge de type Pirani. Enfin, la microfuite (MFE Riber) correspondante permet d'effectuer le remplissage du système (cellule + canalisations) sous la pression voulue. Pendant cette opération, les vannes VV1, VV3 et VV4 sont fermées, les vannes VV2 et VME ouvertes : la pression dans la cellule est suivie par lecture directe sur la jauge Baratron. On introduit d'abord l'oxygène (gaz sous la plus petite pression partielle), puis on complète avec la pression voulue d'hélium. Dès que le remplissage est terminé, on isole la cellule en fermant la vanne VME.

Les pressions que nous avons utilisées sont de 0,2 à 2,0 mtorr pour l'oxygène et de 0,1 à 1 torr pour l'hélium (le plus souvent 0,35 torr).

---

(\*)

De plus, avant étuvage, un nettoyage poussé des parois de la cellule a été effectué en entretenant dans la cellule, remplie de 1 torr d'hélium, une décharge intense à l'aide de plusieurs antennes de magnétron.

(\*\*)

Cette manoeuvre est possible avec les robinets que fournissait l'Air Liquide avec ces cartouches jusqu'en 1978. Ces robinets, en position dite "fermée", permettent en effet de faire le vide jusqu'à la bille qui assure l'étanchéité de chaque cartouche. L'"ouverture du robinet" provoque simplement le déplacement d'un pointeau qui, par pression sur cette bille, ouvre la cartouche. L'adaptation de ce type de robinets aux cartouches commercialisées actuellement peut être faite en raccourcissant leur pointeau de 2 mm.



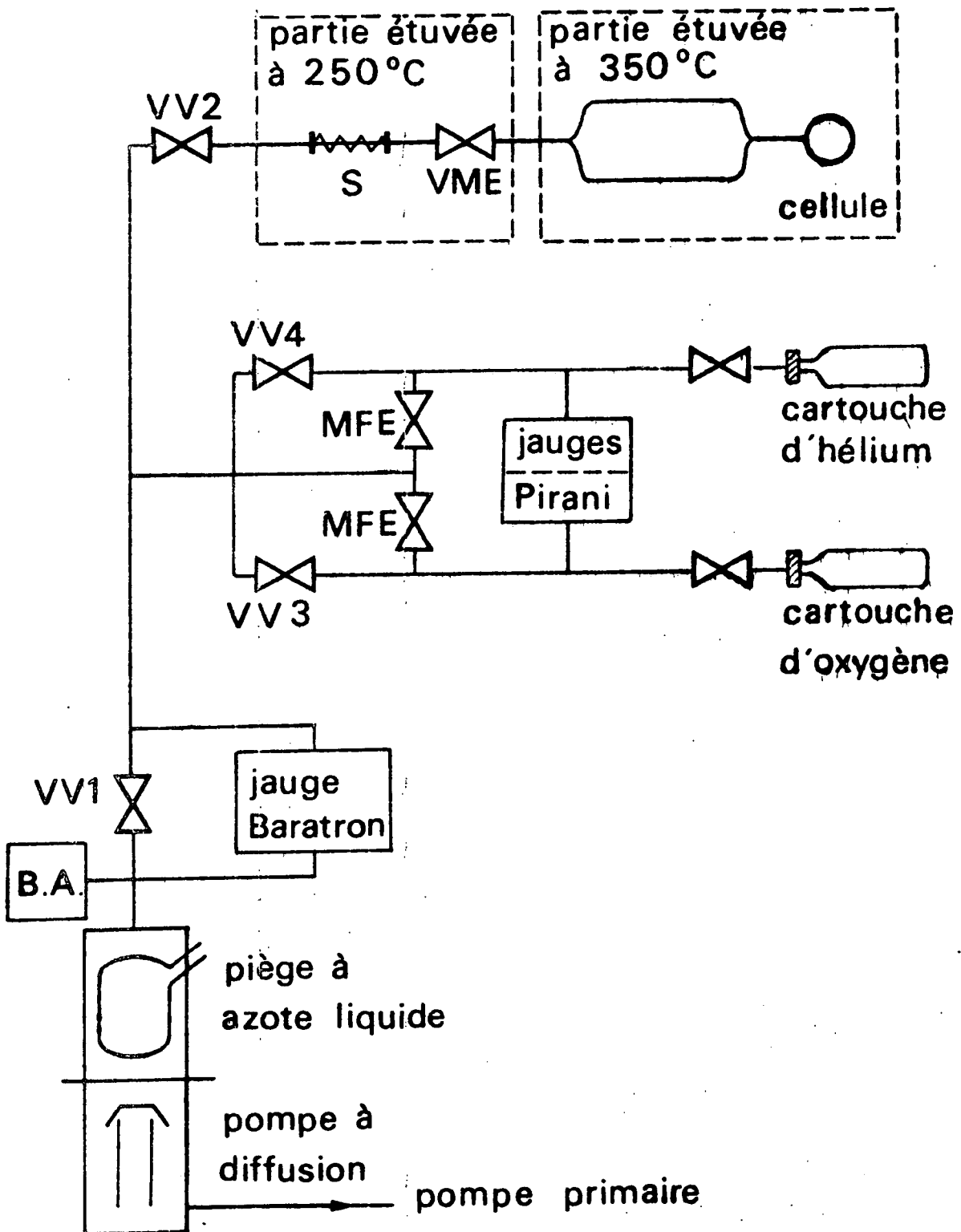


Figure 2 : Schéma du banc de pompage et du dispositif de remplissage de la cellule.

## 2) Le blindage magnétique

La cellule est placée au centre d'un blindage magnétique formé de 5 cylindres coaxiaux en  $\mu$ -métal de longueur 1,20 m et de diamètre 0,50 à 0,70 m. Nous n'avons pas utilisé les couvercles qui, en s'adaptant aux cylindres, peuvent permettre de limiter les fluctuations du champ magnétique résiduel à quelques dizaines de nG [30]. Tout objet magnétique est proscrit de l'environnement immédiat de la cellule (la vanne VME est amagnétique). L'homogénéité de champ magnétique résiduel (liée au champ magnétique terrestre), obtenue au centre du blindage sur le volume de la cellule, est inférieure à 0,2 mG. Cette valeur a été obtenue par mesure directe avec un milligaussmètre Hewlett-Packard (modèle 428 B); elle est confirmée par nos résultats expérimentaux.

## 3) La lampe à décharge

Il s'agit d'un cylindre en pyrex de diamètre 3 cm et d'épaisseur 1 cm, relié à un réservoir cylindrique de volume 0,5 l. Les meilleurs résultats que nous ayons obtenus l'ont été avec un mélange de 5 à 7 torr d'hélium et de 0,2 torr d'oxygène.

Elle est excitée par une antenne de magnétron qui délivre une puissance d'environ 110 W (à 2,4 GHz). Les positions relatives de la lampe et de l'antenne doivent être soigneusement ajustées de façon à obtenir la meilleure stabilité possible de l'intensité lumineuse émise. Un réglage souvent délicat doit en effet être effectué de façon à éviter des régimes de décharge oscillants.

## 4) Le laser à colorant

Il a remplacé la lampe à décharge utilisée dans un premier temps. Il s'agit d'un laser à colorant fonctionnant en continu (modèle CR 599) pompé par un laser à  $\text{Kr}^+$  (CR 52). Ce dernier ne délivrant que 800 mW dans le rouge, nous avons utilisé pour le laser à colorant un montage en "tight focusing" de façon à abaisser son seuil d'oscillation. Pour la même raison, on a choisi un miroir de sortie de taux de réflexion élevé (99%). Le colorant utilisé, qui est celui de meilleur rendement autour de 7800 Å, est l'Oxazine 750 (\*). La puissance ainsi obtenue, sans aucun élément sélectif dans la cavité, est d'environ 40 mW.

---

(\*) La mise au point du laser à colorant a été réalisée par Michèle LEDUC.

Pour limiter la largeur spectrale du laser et pouvoir se placer facilement sur chacune des trois raies de structure fine de la transition étudiée, on a placé dans la cavité, en plus d'un filtre de Lyot, un étalon mince d'épaisseur 0,5 mm, presque normal à la direction du faisceau et pouvant subir une très petite rotation autour de sa position par l'intermédiaire d'un moteur et d'une boîte de vitesses. La puissance disponible ainsi à 7773 Å est de 5 à 10 mW sur une largeur spectrale de 4 GHz.

#### 5) Les champs magnétiques appliqués

Deux bobines en position de Helmholtz, placées à l'intérieur du blindage, permettent d'appliquer au niveau de la cellule un champ magnétique statique  $\vec{B}_0$ , longitudinal par rapport à la direction du pompage. Son amplitude varie autour de 25 mG, et l'inhomogénéité qui en résulte sur le volume de la cellule est négligeable devant celle du champ terrestre résiduel.

Le champ magnétique de radiofréquence  $\vec{B}_1 \cos \omega t$  est appliqué par l'intermédiaire de deux bobines d'axe perpendiculaire à celui des précédentes, également en position de Helmholtz. Elles sont alimentées de la façon suivante (figure 3) : les signaux délivrés par deux générateurs (un signal sinusoïdal à 70 kHz et un signal carré à 80 Hz) sont mélangés de façon à produire une radiofréquence "hachée" d'amplitude donnée. Celle-ci est atténuée par un atténuateur étalonné avant d'être amplifiée, avec un gain constant, par un ampli Krohn-Hite 10 Watt. Le signal de sortie alimente directement les bobines de radiofréquence, le courant d'alimentation étant contrôlé par la mesure à l'aide d'un oscillographe de la tension aux bornes d'une résistance de 2,7  $\Omega$  placée en série avec les bobines.

#### 6) La décharge et le montage optique

Deux électrodes placées de part et d'autre de la cellule permettent d'exciter dans celle-ci une décharge faible à 8 MHz. La tension nécessaire est produite par un dispositif très classique : le signal délivré par un générateur HF est amplifié par un ampli ENI 10 W, puis alimente un circuit résonnant élévateur de tension.

Les deux montages optiques que nous avons utilisés sont schématisés sur la figure 4 :

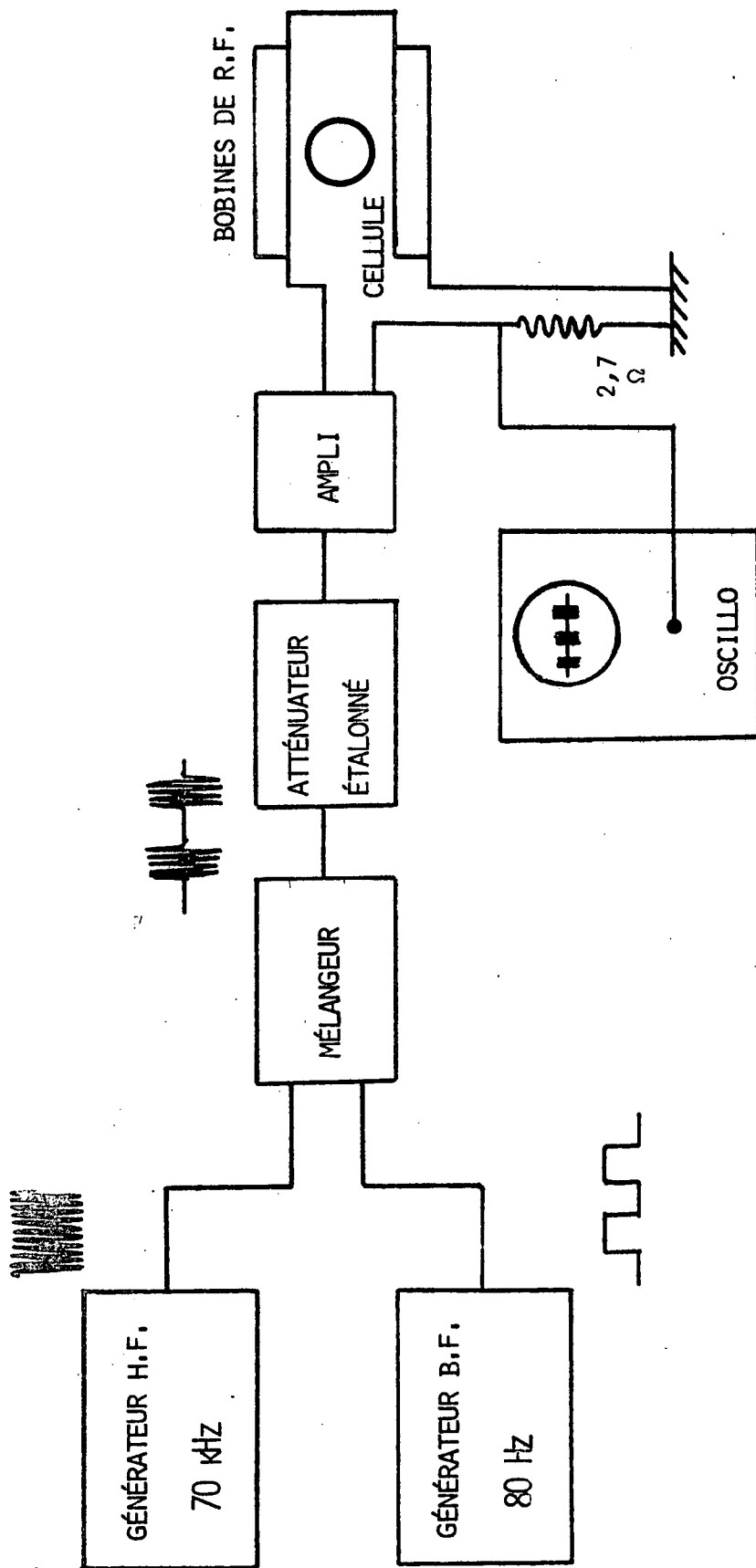


Figure 3 : Schéma du dispositif d'alimentation des bobines de radiofréquence.

• pompage avec une lampe (figure 4-a) :

Pour que le pompage optique effectué avec la lampe à décharge soit le plus efficace possible, il nous a fallu utiliser au mieux la lumière émise par celle-ci. Les meilleurs résultats ont été obtenus avec une canne cylindrique en plexiglas qui guide la lumière de pompage de la lampe jusqu'à la cellule. Un polariseur circulaire est inséré juste avant cette dernière.

La résonance magnétique est détectée par la modification de l'intensité lumineuse absorbée,  $L_A$ , à 7773 Å (absorption du faisceau de pompage).

Une photodiode placée derrière la lampe fournit un signal proportionnel à l'intensité de pompage. On peut ainsi, par une méthode de différence entre les signaux délivrés par le PM et la photodiode (leurs niveaux continus sont ajustés à la même valeur), éliminer en grande partie le bruit du signal de détection lié aux instabilités de la lampe.

• pompage avec le laser à colorant (figure 4-b) :

Le faisceau de pompage, étendu par deux lentilles, et polarisé circulairement, est envoyé sur la cellule par un jeu de miroirs. Le bruit d'intensité du laser étant beaucoup plus grand que celui d'une lampe, il nous a paru préférable de détecter la résonance magnétique par la modification de la lumière de fluorescence  $L_F$  de la cellule à 7773 Å (fluorescence à la même longueur d'onde que celle utilisée pour le pompage).

Dans les deux cas, nous avons utilisé un photomultiplicateur EMI 9658 R dont le rendement quantique est faible en valeur relative à cette longueur d'onde. Il avait cependant une meilleure sensibilité à 7773 Å que les PM sensibles à l'infra-rouge dont nous disposions. Il était utilisé avec seulement 3 dynodes pour la détection de  $L_A$ , et avec 7 dynodes pour la détection de  $L_F$  (qui est plus faible).

7) Le dispositif de détection

Le signal délivré par le PM est traité par une détection synchrone PAR 124 réglée sur la fréquence de hachage du champ de radiofréquence, puis alimente la voie Y d'un enregistreur. Une tension proportionnelle au champ magnétique statique  $\vec{B}$  est appliquée sur la voie X de celui-ci.

Des enregistrements sont faits en balayant l'amplitude du champ  $\vec{B}_0$ , pour différentes valeurs de la puissance du champ de radiofréquence  $\vec{B}_1$  appliqué aux atomes et, éventuellement, pour différentes fréquences de ce champ de façon à vérifier l'étalonnage de la voie X (le facteur de Landé du niveau étudié est très bien connu [19] ).

#### IV. RESULTATS

##### 1) Pompage optique avec une lampe à décharge

###### a) Caractéristiques de la résonance magnétique observée

Nous avons observé, dans les conditions expérimentales décrites ci-dessus, un signal de résonance magnétique centré sur la valeur du champ  $\vec{B}_0$  déduite du facteur de Landé  $g$  du niveau ( $g \approx 2$ ). Une courbe expérimentale est reproduite sur la figure 5.

Nous avons effectué différents tests de façon à nous assurer que la résonance observée était bien celle que nous cherchions et non pas en particulier celle du niveau  $2^3S_1$  de  $^4\text{He}$  qui a également pour facteur de Landé  $g \approx 2$  (de l'hélium était présent à la fois dans la cellule et dans la lampe qui émettait donc la raie à  $1,08 \mu$ ; celle-ci aurait pu, par pompage optique, orienter les métastables  $2^3S_1$  présents dans la cellule). Nous avons vérifié :

- que le signal observé résultait bien d'une modification de la lumière absorbée par la cellule à  $7773 \text{ \AA}$ , en plaçant différents filtres devant le PM de détection;
- que la résonance observée était celle de  $\text{O}(^5S)$ , en utilisant une cellule remplie d' $^3\text{He}$  et non pas d' $^4\text{He}$ ; on a étudié de plus, dans les mêmes conditions expérimentales, la résonance magnétique de  $^4\text{He}$  ( $2^3S_1$ ) et constaté qu'elle avait une largeur différente;
- que l'oxygène était bien directement orienté par la lumière de pompage à  $7773 \text{ \AA}$  et non par un transfert d'orientation à partir de l'hélium (le remplacement du polariseur circulaire par un autre, circulaire pour la longueur d'onde  $1,08 \mu$ , donne lieu à un signal beaucoup plus petit).

L'amplitude du signal obtenu est petite : environ  $10^{-5}$  de l'intensité transmise par la cellule. Pour une cellule contenant  $0,35 \text{ torr}$

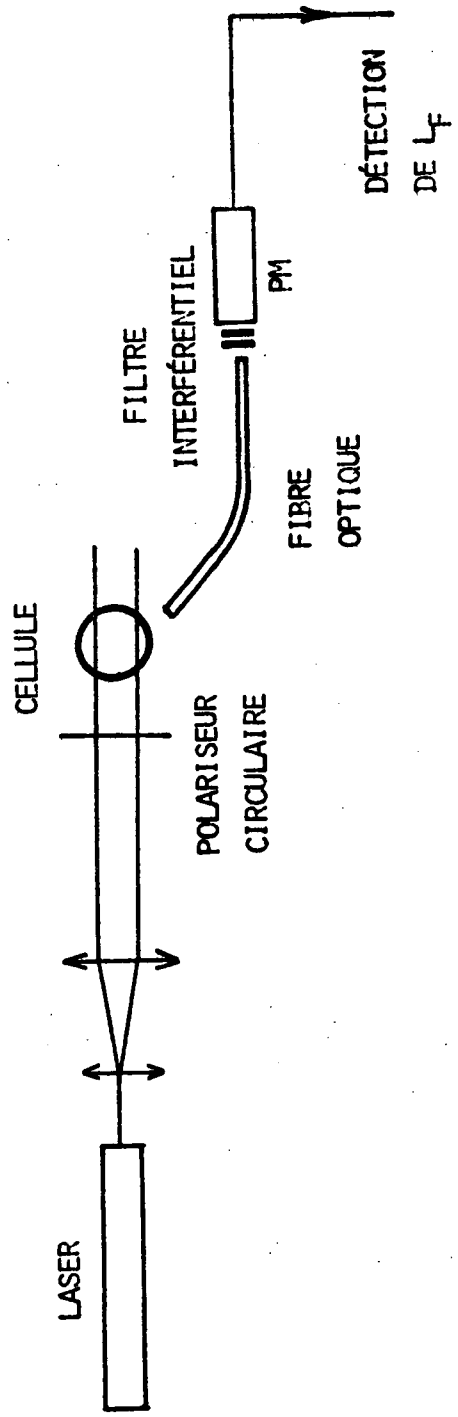
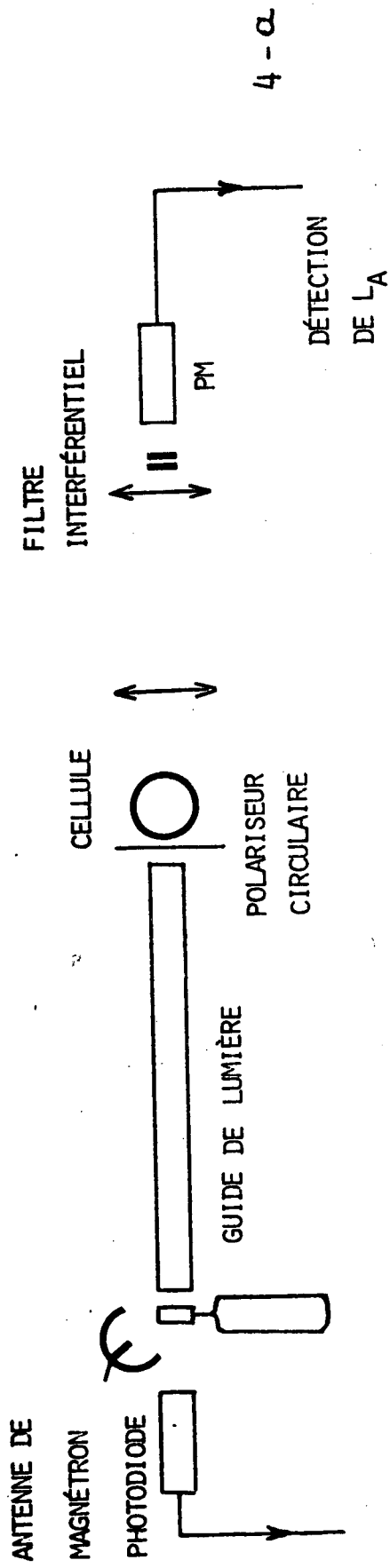


Figure 4 : Montages optiques utilisés : a. pompage avec une lampe ;  
b. pompage avec le laser à colorant.

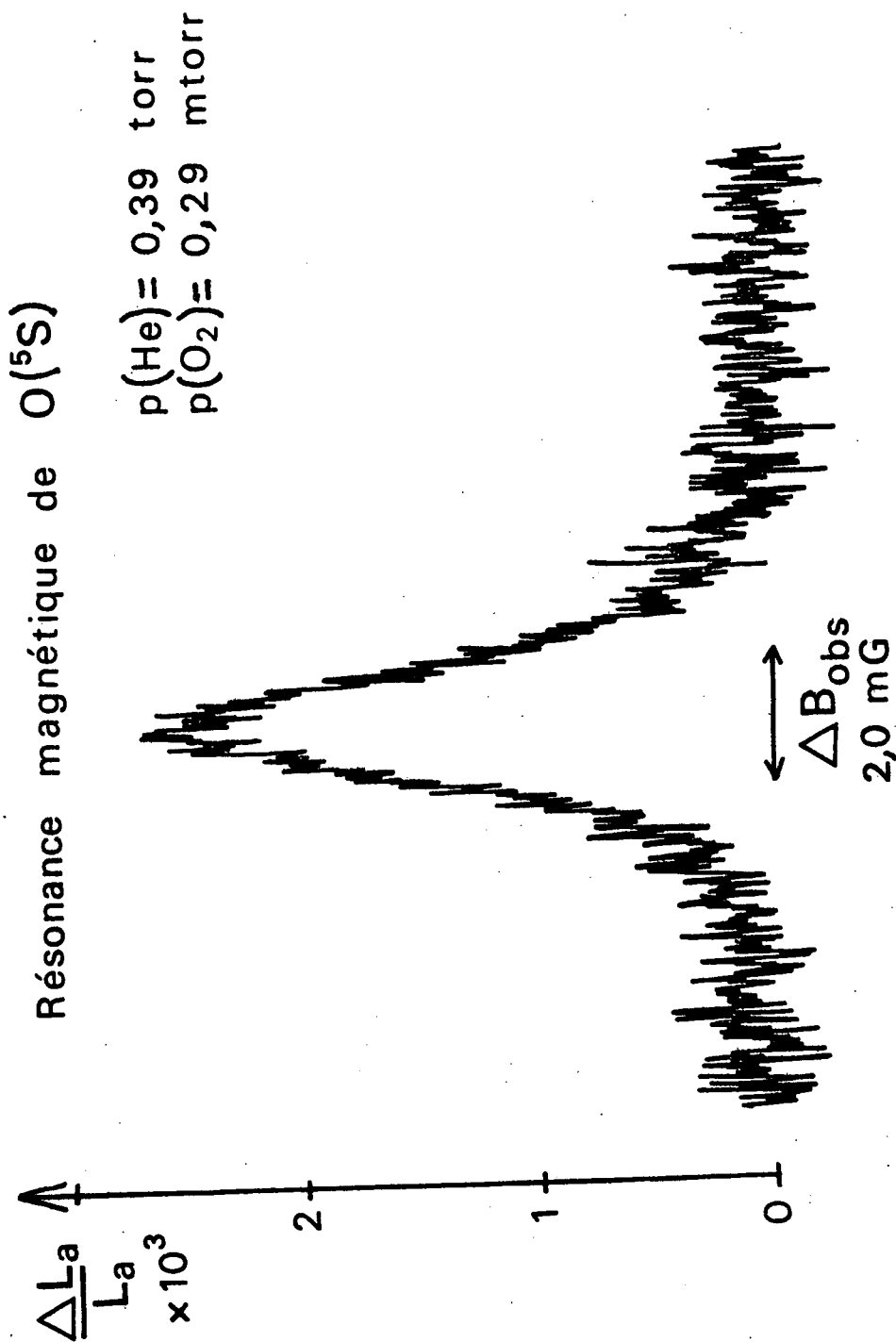


Figure 5 : Signal de résonance magnétique de  $O(^5S)$ , obtenu en balayant l'amplitude du champ magnétique statique  $B_0$ .



d'hélium et 0,4 mtorr d'oxygène, dont le taux d'absorption est de  $4 \times 10^{-3}$ , la variation relative  $\Delta L_A / L_A$  de la lumière absorbée est donc de  $2,5 \times 10^{-3}$  ( $L_A$  est la lumière absorbée par les métastables, et  $\Delta L_A$  la variation maximum de celle-ci due à la désorientation du niveau  $^5S$  par résonance magnétique).

La largeur de la résonance est faible, de l'ordre du mG, à peine supérieure à la largeur radiative (0,6 mG). Le métastable  $^5S$  est donc peu désorienté par les collisions qu'il subit dans la cellule.

b) Etude systématique de la largeur de la résonance

Nous avons cherché à mettre en évidence les causes de désorientation du métastable  $^5S$ . Pour cela, nous avons fait varier un par un les paramètres expérimentaux, en mesurant à chaque fois la largeur  $\Delta B_0$  de la résonance en extrapolant la largeur observée  $\Delta B_{obs.}$  à puissance de radiofréquence nulle (on sait en effet que  $\Delta B_{obs.}^2 - \Delta B_0^2 \propto B_1^2$ ).

Nous n'avons observé aucun effet de l'intensité du faisceau de pompage. Etant donnée la faible intensité dont nous disposons, le temps de pompage est certainement long devant la durée de vie du niveau.

L'intensité de la décharge dans la cellule n'influe pas non plus sur la largeur de la résonance. Les collisions des électrons de la décharge avec le métastable  $^5S$  ne semblent donc jouer aucun rôle, non plus que les collisions entre deux atomes d'oxygène (le taux de dissociation dépend de l'intensité de la décharge).

De plus, la comparaison des signaux obtenus avec différentes pressions d'hélium (entre 0,1 et 1,0 torr), et pour une pression donnée d'oxygène, n'a pas permis de mettre en évidence d'effet de la pression d'hélium sur la largeur du signal. Ce fait s'explique simplement : les collisions du métastable  $^5S$  avec le fondamental  $^1S_0$  de l'hélium ne dépolarisent pas le métastable (règle de Wigner de conservation du spin électronique dans une collision).

Signalons également que, dans ces conditions de pression, le temps de diffusion des atomes métastables vers les parois de la cellule est d'au moins  $10^{-3}$  s.; les collisions sur les parois constituent donc pour eux un processus de désorientation négligeable.

Finalement, nous n'avons pu mettre en évidence expérimentalement de variation de la largeur du signal de résonance magnétique qu'en fonction d'un seul paramètre : la pression d'oxygène dans la cellule. Une étude systématique de l'évolution de cette largeur en fonction de la pression d'oxygène a été menée dans la gamme de pression où le signal est suffisamment grand pour être étudié (au-dessus de 1 à 2 mtorr d'oxygène, le signal est très faible, en raison même des collisions dépolarisantes). Le résultat de cette étude est porté sur la figure 6. Les traits correspondent aux incertitudes expérimentales (liées à l'extrapolation de la largeur à puissance de radiofréquence nulle). La droite pointillée est obtenue par une méthode de moindres carrés. Son ordonnée à l'origine est de 0,7 mG; la flèche indique la largeur d'origine radiative (0,6 mG). La différence entre les deux valeurs est comparable à l'homogénéité du champ magnétique  $\vec{B}_0$  sur le volume de la cellule (\*).

La pente de la droite est d'environ 1 mG/mtorr. Cela nous permet de déduire pour la section efficace de dépolarisation par collision  $O(^5S) - O_2$  la valeur  $37 \pm 5 \text{ \AA}^2$  (cette valeur est calculée en supposant que le métastable est totalement dépolarisé à chaque collision). Etant donné que l'état fondamental de la molécule  $O_2$  est un état  $^3\Sigma$ , le processus responsable de la dépolarisation du métastable lors d'une collision nous paraît être l'échange de spin. Si cette hypothèse est correcte, il faudrait tenir compte, dans l'évaluation de la section efficace d'échange de spin, d'une conservation probable d'une partie de l'orientation de spin électronique du niveau métastable, de façon analogue à ce qui se produit dans l'échange de métastabilité [<sup>31</sup>]; la section efficace obtenue serait alors supérieure à  $37 \text{ \AA}^2$ .

c) Limites de la méthode

Nous avons pu mener l'étude du signal de résonance magnétique, mais seulement sur une gamme de pression d'oxygène réduite, à cause de la faible amplitude du signal observé. Celle-ci est due, entre autres, au faible taux d'orientation obtenu : la plus grande valeur de  $\Delta L_A/L_A$  mesurée est de  $5 \times 10^{-3}$  à très faible pression d'oxygène.

---

(\*) On peut avoir un bon test de l'inhomogénéité du champ magnétique sur le volume de la cellule en effectuant la résonance magnétique du niveau  $^3S_1$  de  $^4He$  dont la largeur homogène (radiative + collisionnelle) est très faible. Nous avons mesuré la largeur de cette résonance magnétique dans les mêmes conditions expérimentales que pour l'oxygène et à une pression où la diffusion vers les parois n'intervient pas; la valeur obtenue est de  $0,15 \pm 0,05 \text{ mG}$ .

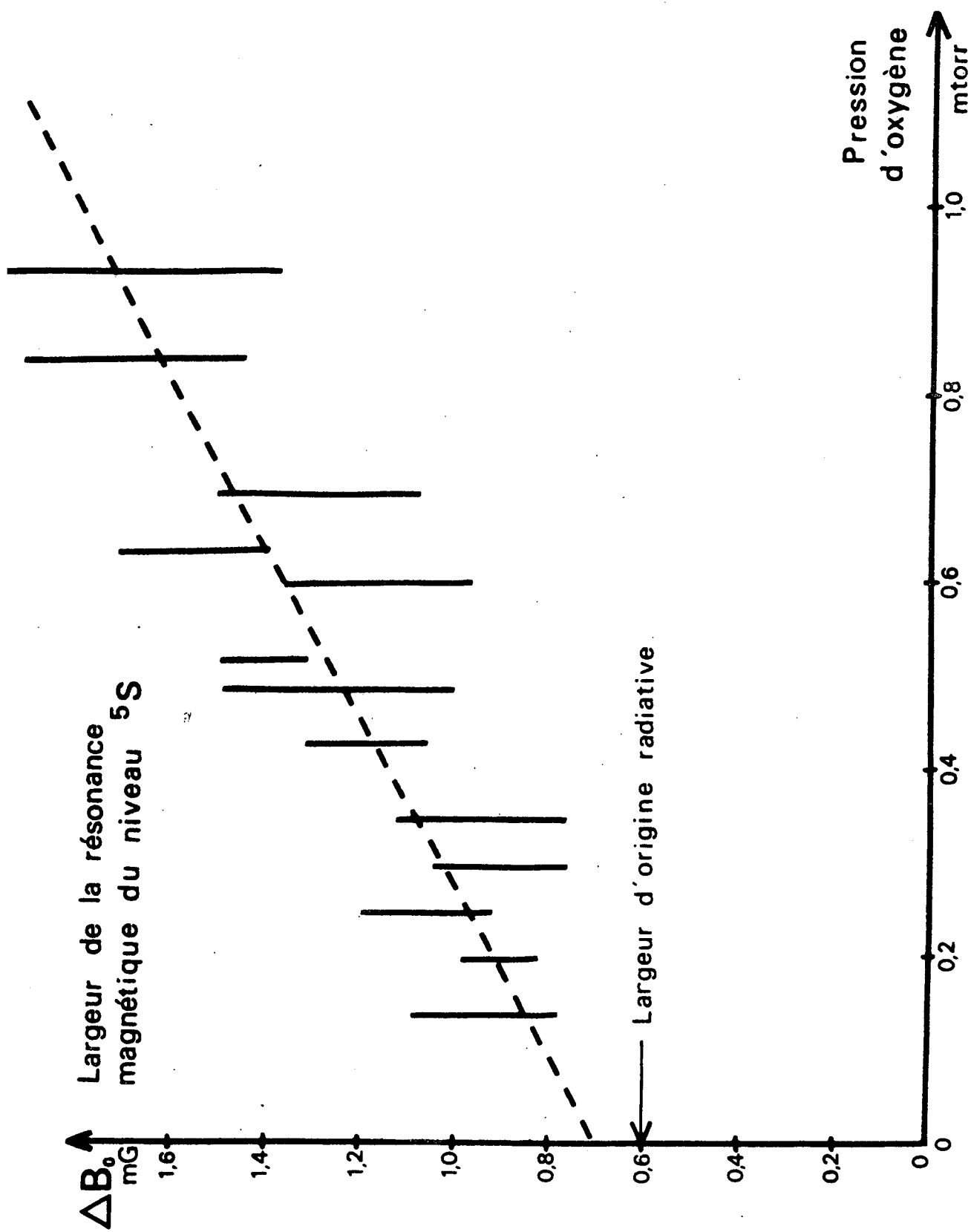


Figure 6 : Variation de la largeur de la résonance magnétique du niveau  $5s$  avec la pression d'oxygène.

Une première raison en est la faible intensité lumineuse émise par la lampe à décharge. Cependant une deuxième raison intervient, liée au fait que le pompage et la détection se font ici par l'intermédiaire des trois raies de structure fine de la transition  $^5S-^5P$ . Aux pressions que nous avons utilisées, les collisions dépolarisantes dans le niveau  $^5P$  ont un effet négligeable et les 3 raies de pompage créent des orientations de même signe dans le niveau  $^5S$ . Cependant, les signaux correspondants, détectés sur l'absorption des trois raies  $J = 2 \rightarrow J = 1$ ,  $J = 2 \rightarrow J = 2$  et  $J = 2 \rightarrow J = 3$ , se retranchent partiellement (ils sont affectés des coefficients +5, +9 et -14) [32][33]. Dans le cas où les 3 raies seraient émises avec la même intensité, le signal total serait nul : une orientation purement de spin ne peut être détectée. En effet, le temps de passage du paquet d'ondes excitateur est trop court pour que le couplage responsable de la structure fine dans le niveau  $^5P$  ait le temps de se produire. En réalité, le spectre de la lumière émise par la lampe montre que les trois raies en question ont des intensités différentes, correspondant approximativement aux poids statistiques des trois niveaux de structure fine.

## 2) Pompage optique avec un laser à colorant

### a) Signaux de résonance magnétique

La fréquence du laser est accordée sur l'une des trois transitions de structure fine étudiées (apparition d'un signal de fluorescence  $L_F$  détecté par le PM). Les signaux de résonance magnétique observés sont représentés sur la figure 7. Leurs signes respectifs correspondent bien aux prévisions théoriques présentées dans le paragraphe précédent ( $\Delta L_A$  et  $\Delta L_F$  sont de même signe). Leurs amplitudes sont beaucoup plus grandes que dans le cas du pompage optique avec une lampe : les valeurs correspondantes de  $\Delta L_F/L_F$  sont respectivement de 7%, 8% et -1%. Le pompage optique par laser est beaucoup plus efficace (par un facteur 30 environ) que celui par une source classique à décharge. La largeur  $\Delta B_0$  des signaux, extrapolée à puissance de radiofréquence nulle, est de l'ordre de 1,8 mG pour les trois transitions.

### b) Interprétation physique

Dans une gamme d'intensité de pompage où le rapport signal/bruit obtenu est satisfaisant, les signaux de résonance magnétique ont

d'emblée été trouvés plus larges que dans le cas du pompage optique avec une lampe. Les caractéristiques spectrales des faisceaux de pompage utilisés dans les deux cas diffèrent en effet de façon importante. Le laser à colorant fonctionnait en régime multimode, de sorte que seuls deux ou trois de ses modes, présents dans la largeur Doppler, participaient au pompage. Différentes conséquences découlent de cette situation :

■ Les modes participant au pompage sont en compétition avec tous les autres, et également entre eux, de sorte que leurs intensités diffèrent suivant la nature et le nombre des modes en présence. L'efficacité du pompage fluctue donc et le bruit qui en résulte est beaucoup plus important qu'avec une lampe classique.

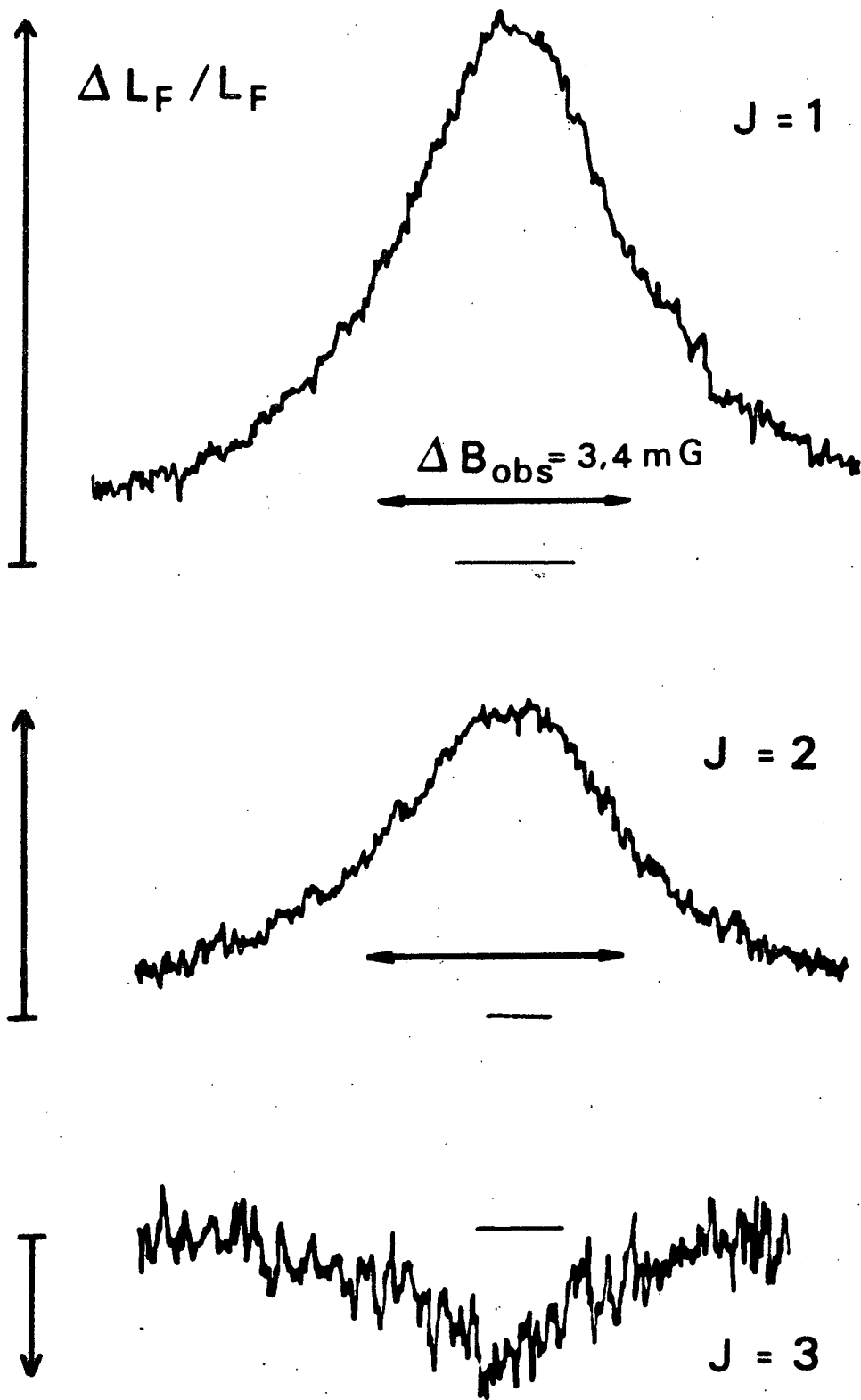
■ Chacun de ces modes pompe sélectivement dans la cellule une classe d'atomes de vitesse longitudinale donnée [34] ; les collisions de changement de vitesse des atomes d'oxygène  $O(^5S)$  avec l'hélium présent dans la cellule transfèrent l'orientation, sans la détruire totalement vers les autres classes d'atomes.

Dans ces conditions, l'élargissement observé de la résonance magnétique peut avoir plusieurs causes, parmi lesquelles :

- une saturation partielle de l'orientation créée par le pompage;
- une redistribution imparfaite de l'orientation sur tout le profil Doppler : dans ce cas, comme la détection sur la lumière de fluorescence ne permet d'atteindre que les atomes directement excités par le laser, la largeur de la résonance magnétique dépend, non seulement des collisions dépolarisantes, mais aussi des collisions de changement de vitesse (qui sont beaucoup plus fréquentes).

## V. CONCLUSION

L'expérience que nous avons réalisée a montré qu'il est possible de pomper optiquement le métastable  $^5S$  de l'oxygène atomique [35] . Nous avons mis en évidence que, dans une cellule contenant un mélange hélium-oxygène dans la gamme de pression considérée, la principale cause de dépolarisation du métastable est les collisions avec la molécule d'oxygène. Nous avons mesuré la section efficace correspondante, et nous attribuons cette dépolarisation à l'échange de spin entre l'atome métastable et la molécule.



**Figure 7** : Signaux de résonance magnétique du niveau  $5S$  obtenus avec chacune des trois raies de structure fine de la transition  $3s(^5S_2) - 3p(^5P_{1,2,3})$

L'obtention de taux de polarisation élevés (plus de 1%) nécessite l'utilisation comme source lumineuse d'un laser à colorant. Celui-ci doit être rendu monomode si l'on veut contrôler les paramètres réglant le pompage optique dans la cellule. Nous n'avons pas pu réaliser d'expérience dans ces conditions ne disposant pas d'un laser de pompe à  $Kr^+$  suffisamment puissant.

Cependant une telle expérience pourrait être reprise dans l'avenir. Elle pourrait permettre d'étudier les différentes collisions concernant le métastable  $^5S$ , par exemple les collisions de changement de vitesse avec un gaz tampon tel que l'hélium, ou de transfert d'orientation à d'autres espèces atomiques ou moléculaires. Une autre voie pourrait être ouverte par la mise au point de lasers à  $1,08 \mu$ , qui est en cours actuellement : elle permettrait l'étude du transfert d'orientation du métastable  $2^3S_1$  de l'hélium au  $^5S$  de l'oxygène.

DEUXIÈME PARTIE :

---

---

POMPAGE OPTIQUE SÉLECTIF EN VITESSES  
DES MÉTASTABLES DU NÉON



## INTRODUCTION

Nous décrivons dans cette deuxième partie différentes expériences qui ont toutes en commun l'utilisation d'un laser monomode balayable pour effectuer le pompage optique de niveaux métastables du néon. Le chapitre A est consacré à des généralités : on y présente les caractéristiques spécifiques du pompage optique avec un laser monomode puis l'on décrit les éléments du montage expérimental communs à ces expériences. Les différentes expériences réalisées sont décrites dans les chapitres suivants. Les premières utilisent un faisceau de pompage et un faisceau sonde se propageant en sens opposé (chap. B). Les secondes utilisent deux faisceaux de pompage non colinéaires et un faisceau sonde coplanaire avec eux (chap. C). Dans les dernières (chap. D), la détection du pompage optique est faite par une méthode optogalvanique et l'on utilise, soit un faisceau de pompage unique, soit deux faisceaux se propageant en sens opposés.

## CHAPITRE A

### GÉNÉRALITÉS

#### I. POMPAGE OPTIQUE AVEC UN LASER MONOMODE

##### 1) Sélectivité en vitesses

Depuis quelques années, la mise au point de sources lumineuses dont la largeur spectrale est très inférieure à la largeur Doppler des raies d'absorption atomiques a ouvert la voie à de nouvelles méthodes spectroscopiques utilisant la sélectivité en vitesses de l'excitation ainsi produite.

Cet effet de sélectivité en vitesses, bien connu, peut être présenté de la façon suivante. Considérons un faisceau laser monomode, se propageant le long de la direction Oz et illuminant des atomes contenus dans une cellule. Si la fréquence  $\Omega_L/2\pi$  du laser est proche de la fréquence  $\Omega_0/2\pi$  d'une transition atomique, seuls certains atomes sont en interaction résonnante avec le faisceau incident : ceux dont la projection  $v_z$  de leur vitesse le long de l'axe Oz vérifie, à la largeur homogène de la transition près, la condition :

$$\Omega_L - \Omega_0 = k v_z \quad (1)$$

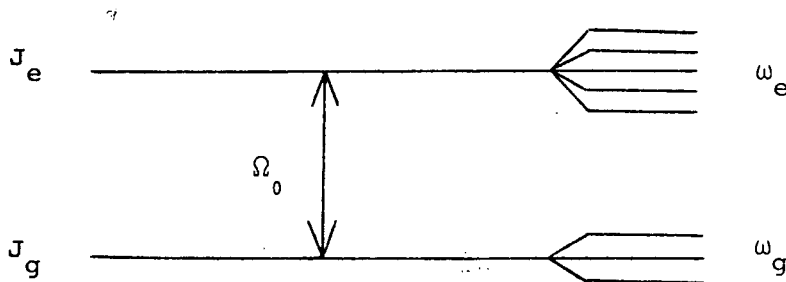
où  $k$  est le module du vecteur d'onde du faisceau laser. Ainsi, la sélectivité en vitesses de l'excitation est susceptible d'induire des corrélations entre les variables internes et les variables externes (ici  $v_z$ ) des atomes.

Parmi les méthodes utilisant cette propriété, la plus connue est celle de l'absorption saturée qui fait intervenir des effets de saturation optique créés par un laser de forte intensité ; cette méthode a donné lieu

à de nombreuses applications [ 36]. Il est cependant possible d'obtenir des corrélations entre variables internes et variables externes atomiques sans effets de saturation optique dans le cas où les deux niveaux de la transition étudiée ont des durées de vie très différentes et possèdent une structure (Zeeman ou hyperfine). Dans ce cas, même pour des intensités lumineuses suffisamment faibles pour que les atomes évoluent en "régime de pompage" [ 37], l'excitation peut produire des différences de population entre les sous-niveaux du niveau inférieur de la transition. Nous parlerons alors de "pompage optique sélectif en vitesses" (P.O.S.V. ou, en anglais, V.S.O.P.) [ 34], de façon à mettre l'accent sur le fait que cette méthode n'est qu'un cas particulier des méthodes classiques du pompage optique ("régime de pompage"), le cas où, à cause de la faible largeur spectrale de la source utilisée, les observables créées par le pompage sont corrélées à la vitesse des atomes.

2) Régime d'évolution des atomes sous l'effet du pompage

Rappelons les conditions à remplir pour que, sous l'effet de l'interaction avec le faisceau lumineux incident, les atomes évoluent en "régime de pompage". Nous nous intéressons ici à un système atomique à deux niveaux  $g$  et  $e$ , de moments cinétiques respectifs  $J_g$  et  $J_e$ . Soit  $\Omega_0/2\pi$  la fréquence de la transition optique reliant  $g$  et  $e$ .



Le niveau  $e$  a une durée de vie radiative  $\tau_e = \Gamma^{-1}$  beaucoup plus courte que celle du niveau  $g$ . Soit  $\Gamma_{eg}$  l'inverse de la durée de vie  $\tau_{eg}$  de la cohérence optique associée à la transition  $g \leftrightarrow e$ . En l'absence de collisions déphasantes, on a  $\Gamma_{eg} = \Gamma/2$ .

Dans les expériences de pompage optique avec des sources classiques, le temps de corrélation de l'interaction entre les atomes et le champ incident, limité par l'inverse de la largeur spectrale de la source, est suffisamment

court pour que les cohérences optiques restent négligeables à tout instant. Dans ce cas, l'évolution du système atomique peut être décrite en termes de coefficients d'absorption et d'émission spontanée [3] [38] [39] : on parle de "régime de pompage" [37].

Par contre, dans le cas de l'excitation par un laser monomode, la largeur spectrale est en général petite devant  $\Gamma_{eg}$ . On peut donc, dans le référentiel du laboratoire, écrire l'onde incidente comme une onde plane classique de polarisation  $\vec{e}_\lambda$ , d'amplitude  $2\mathcal{E}$  et de vecteur d'onde  $\vec{k}$  :

$$\mathcal{E}(\vec{r}, t) = \vec{e}_\lambda \mathcal{E} \exp [i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \Omega_L t)] + c.c.$$

Le temps de corrélation de ce champ électrique est infini et l'évolution du système atomique doit en général être décrite par les équations de Bloch (régime d'"oscillations cohérentes"). On peut cependant [37] obtenir à nouveau un "régime de pompage" avec ce type de source à la limite des intensités faibles où :

$$D_{eg} \mathcal{E} \ll \hbar \Gamma_{eg} \quad (2)$$

où  $D_{eg}$  est de l'ordre de grandeur d'un élément de matrice d'une composante de  $\vec{D}$  entre un sous-niveau de  $g$  et un sous-niveau de  $e$  ( $\vec{D}$  est le moment dipolaire électrique de l'atome).

La condition (2) exprime que le temps caractéristique d'évolution des observables atomiques sous l'effet du pompage est beaucoup plus grand que  $\tau_{eg}$  ; les cohérences optiques restent donc toujours négligeables et suivent, de façon quasi-instantanée, les différences de population auxquelles elles sont couplées. Si  $\Gamma_{eg}$  n'est pas beaucoup plus grand que  $\Gamma$ , il est d'ailleurs cohérent avec (2) de négliger les effets d'émission stimulée que pourrait induire le faisceau de pompage.

### 3) Autres causes d'évolution

Le système atomique évolue également sous l'action d'autres processus : relaxation, effet de champ appliqués, etc...

La relaxation dans le niveau  $g$  peut être due à différentes causes : processus radiatif, temps de transit fini des atomes dans les faisceaux et relaxation sur les parois, collisions entre atomes... Le taux de relaxation  $\gamma$

dans ce niveau vérifie la condition :

$$\gamma \ll \Gamma_{eg}$$

Dans ce cas, même si la condition (2) est vérifiée, le faisceau de pompage peut avoir des effets importants sur les populations des différents sous-niveaux Zeeman du niveau métastable (\*) g.

Le système atomique est soumis à un champ magnétique statique appliqué  $\vec{B}_0$ . L'amplitude  $B_0$  de celui-ci est faible de sorte que les écarts Zeeman  $\omega_g$  (resp.  $\omega_e$ ) entre les sous-niveaux de g (resp. e) sont petits devant la largeur de la transition :

$$\omega_g, \omega_e \ll \Gamma_{eg} \quad (3)$$

Par contre, l'écart Zeeman  $\omega_g$  dans le niveau métastable peut être comparable aux taux de relaxation dans ce niveau ;

$$\omega_g \gtrsim \gamma$$

Au total, l'évolution du système atomique sous l'effet de l'excitation de la relaxation et du champ magnétique appliqué est décrite par les équations classiques du pompage optique [3] [38]. Cependant, l'excitation étant sélective en vitesses, ces équations doivent être écrites pour chaque classe d'atomes de vitesse donnée. Les collisions font en général apparaître dans ces équations des termes de couplage entre les différentes classes d'atomes ; dans le cas particulier où les collisions jouent un rôle négligeable, ces différentes classes évoluent indépendamment les unes des autres.

## II. MONTAGE EXPERIMENTAL

### 1) Le choix des métastables du néon ; la cellule

Nous avons choisi de réaliser ces expériences de pompage optique sélectif en vitesses sur l'atome de néon, car les niveaux d'énergie de celui-ci en font un atome qui se prête particulièrement bien au pompage optique

---

(\*) A partir de maintenant, on conviendra d'appeler "niveau métastable" le niveau g, car ceci correspond aux expériences que nous avons effectivement réalisées ; cependant, g peut être un niveau fondamental ou un niveau radiatif tant que l'inverse de sa durée de vie est petit devant  $\Gamma_{eg}$ .

(il a d'ailleurs déjà fait l'objet de nombreuses études ; voir par exemple [28] [29] [45] [49] [51]). La figure 8 représente ses premiers niveaux d'énergie excités. La configuration  $2s^2 2p^5 3s$  possède 4 niveaux dont deux métastables qu'on peut noter  $^3P_0$  et  $^3P_2$  (ou  $1s_3$  et  $1s_5$  en notation de Paschen). La configuration supérieure  $2s^2 2p^5 3p$  possède 10 niveaux de durées de vie courtes ( $\approx 2 \cdot 10^{-8}$  s) notés  $2p_1$  à  $2p_{10}$  en notation de Paschen. Les longueurs d'onde des transitions entre les niveaux de ces deux configurations, situées dans le domaine visible, sont obtenues facilement avec les lasers à colorant usuels. Dans la plupart de nos expériences, nous avons utilisé la transition à 6402 Å qui relie le niveau métastable  $^3P_2$  au niveau  $2p_9$  de moment cinétique  $J = 3$ . La largeur naturelle en fréquence de cette transition est d'environ 8 MHz. Les deux niveaux forment en principe un "système fermé", car le niveau  $2p_9$  ne peut se désexciter par émission spontanée que vers le niveau  $^3P_2$ . En pratique cependant, différents processus peuvent intervenir, comme par exemple des processus collisionnels transférant la population de l'un des deux niveaux vers d'autres niveaux, de sorte que la système n'est pas totalement fermé.

Sauf pour les expériences faites sur le  $^{21}\text{Ne}$  où les cellules utilisées étaient scellées, le gaz étudié (néon pur, ou mélange hélium-néon) était contenu dans une cellule sphérique en pyrex de diamètre 11 cm environ et reliée à un banc de pompage. Cette cellule était munie de deux fenêtres planes de diamètre 5 cm de façon que la qualité optique du faisceau sonde ne soit pas altérée par la traversée de la cellule. Le banc de pompage ainsi que le dispositif d'étuvage et de remplissage de la cellule ont été décrits dans la 1ère partie de ce mémoire, et schématisés sur la figure 2. La cartouche d'oxygène a simplement été remplacée par une cartouche de néon naturel (90 % de  $^{20}\text{Ne}$  et 10 % de  $^{22}\text{Ne}$ ).

Une décharge faible est entretenue dans la cellule (champ oscillant à 14 MHz, appliqué grâce à deux fils extérieurs à la cellule) de façon à peupler les niveaux métastables du néon.

La cellule est placée au centre d'un jeu de trois paires de bobines en position de Helmholtz d'axes deux à deux orthogonaux, destinées à compenser le champ magnétique terrestre et à pouvoir appliquer un champ magnétique de quelques gauss au maximum.

Les champs sont étalonnés avec un milligaussmètre ; leur mesure se fait directement par la mesure des courants traversant les bobines.

## 2) Le laser

La source lumineuse utilisée pour le pompage et la détection est un laser à colorant fonctionnant avec un mélange de Rhodamine 590 et de Rhodamine 640. Il est pompé avec la raie  $\lambda = 5145 \text{ \AA}$  d'un laser à Argon ionisé. Ce laser à colorant est un modèle CR 490 de Coherent Radiation modifié au laboratoire de façon à le rendre monomode (remplacement du miroir de sortie de la cavité par un sélecteur de modes "double Michelson" décrit dans [34] [40]). Il est placé dans une boîte étanche qui permet de faire varier la pression de l'air contenu dans la cavité et donc également la fréquence du laser.

Un système d'asservissement, schématisé sur la figure 9, impose à la fréquence du laser de suivre celle d'une cavité Fabry-Pérot extérieure. A cet effet, le signal de transmission du Fabry-Pérot est séparé en deux parties : la partie alternative (fréquence  $\geq 1 \text{ Hz}$ ) sert, après intégration et amplification, à piloter la cale piézo-électrique qui contrôle la longueur de la cavité laser ; la partie quasi-continue, de son côté, est utilisée pour le pilotage de la pression dans le laser. De cette façon, un balayage linéaire (croissant) de la pression dans le Fabry-Pérot induit un balayage linéaire (décroissant) de la fréquence du laser à colorant : on réalise ainsi aisément des balayages de plus de 10 GHz. Ce dispositif a également pour effet de réduire le "jitter" du laser à  $\pm 5 \text{ MHz}$  environ.

La puissance délivrée par le laser à  $6402 \text{ \AA}$  est de l'ordre de 30 mW. Cette puissance induit des effets de saturation du pompage optique même avec des faisceaux étendus sur plusieurs  $\text{cm}^2$  : si l'on veut éviter de tels effets, il faut donc atténuer le ou les faisceaux de pompage avec des verres gris.

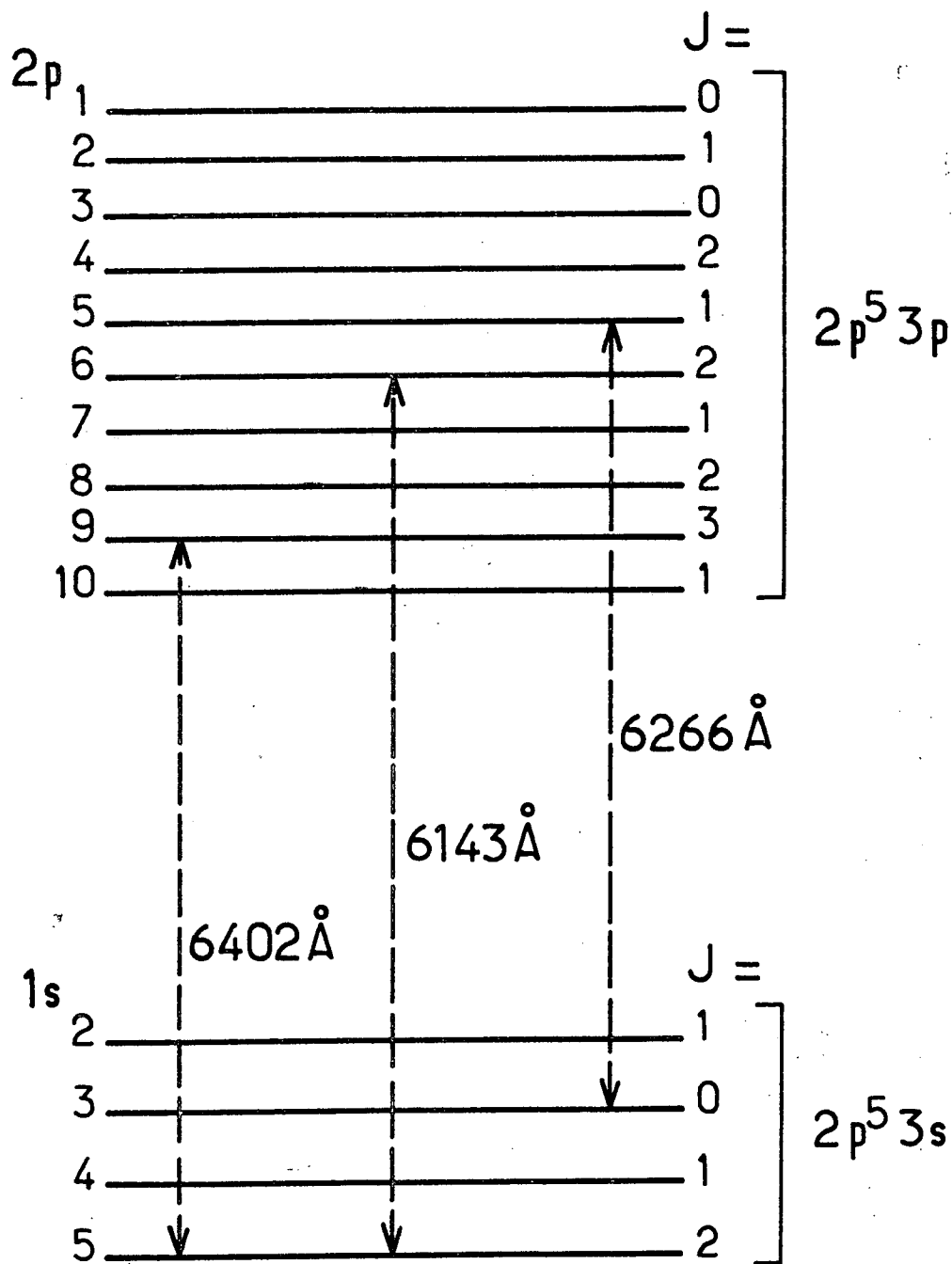


Figure 8 : Schéma des premières configurations excitées de l'atome de néon ; les transitions indiquées sont celles que nous avons utilisées.



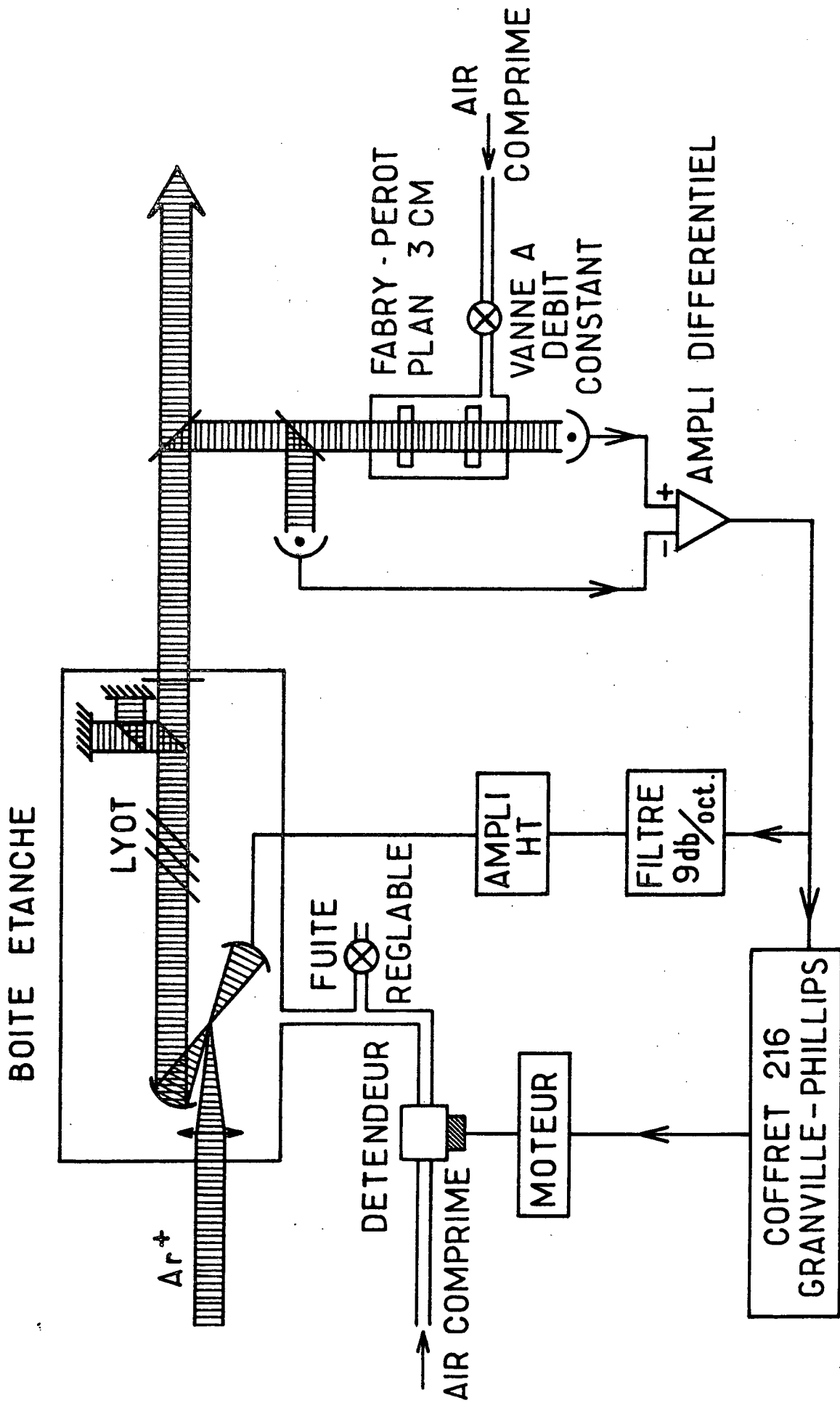


Figure 9 : Schéma du dispositif d'asservissement en fréquence du laser à colorant.

## CHAPITRE B

### POMPAGE OPTIQUE SÉLECTIF EN VITESSES (V.S.O.P.) À 1 FAISCEAU

#### I. PRESENTATION DE LA METHODE

Nous présentons dans ce chapitre quelques expériences de pompage optique sélectif en vitesses où l'utilisation d'un faisceau de pompage unique permet de sélectionner une composante de la vitesse des atomes.

##### 1) Géométrie expérimentale

Le schéma de principe de ces expériences, semblable à celui de la référence [34], est représenté sur la figure 10. Comme dans les expériences d'absorption saturée, on utilise un faisceau de pompage et un faisceau sonde issus du même laser monomode et se propageant en sens opposé le long d'un axe Oz. Par contre, le faisceau de pompage est ici étendu de façon à éviter toute saturation optique de la transition, de sorte que les atomes évoluent en "régime de pompage".

La lame séparatrice  $S_1$ , qui prélève le faisceau sonde après sa traversée de la cellule et qui l'envoie sur le photomultiplicateur de détection PM1, permet d'utiliser deux faisceaux bien colinéaires. Des polariseurs sont placés sur le trajet de chacun des faisceaux de façon à pouvoir sélectionner les observables créées par le pompage et détectées. Dans ces expériences, la polarisation du faisceau de pompage est modulée en créneaux à la fréquence  $\omega$ , entre deux états de polarisation  $\vec{e}_\lambda$  et  $\vec{e}_\mu$  par un cristal électrooptique C, tandis qu'un polariseur fixe P détermine la polarisation du faisceau sonde. Dans le cas où la transmission de la lame séparatrice  $S_1$  n'est

pas la même pour les deux polarisations  $\vec{e}_\lambda$  et  $\vec{e}_\mu$  (cas de polarisations linéaires), ce qui introduirait une modulation parasite de l'intensité du faisceau de pompage au niveau de la cellule, on intercale avant  $S_1$  une deuxième lame séparatrice  $S'_1$  qui compense l'effet de la première (leurs plans d'incidence sont pris orthogonaux).

La lame séparatrice  $S_2$  prélève une partie du faisceau sonde avant sa traversée de la cellule et l'envoie sur le photomultiplicateur PM2. Les signaux délivrés par les photomultiplicateurs PM1 et PM2 sont donc proportionnels à l'intensité du faisceau sonde respectivement avant et après la cellule. Le gain du PM2 ayant été ajusté de façon que leurs composantes continues soient égales, ces signaux alimentent l'amplificateur différentiel d'entrée d'une détection synchrone PAR 124. Cette méthode de détection différentielle permet d'éliminer en grande partie le bruit du signal dû aux fluctuations d'intensité du laser. La référence à la fréquence  $\omega$  est délivrée par le générateur qui pilote le cristal électrooptique C. Le signal de sortie de la détection synchrone est envoyé sur la voie Y d'un enregistreur dont la voie X est alimentée par un signal proportionnel à la pression dans le Fabry-Pérot de référence du laser. Pendant un enregistrement, cette pression croît linéairement, tandis que la fréquence  $\nu_L$  du laser décroît linéairement (c'est pourquoi sur nos courbes le sens des fréquences croissantes est vers la gauche). L'étalonnage de la voie X est facile à partir du déplacement isotopique  $^{20}\text{Ne}-^{22}\text{Ne}$  qui est bien connu.

## 2) Allure générale des signaux

Plaçons nous par exemple dans le cas où le faisceau de pompage, polarisé circulairement, crée dans le niveau g une orientation  $\langle J_z \rangle$  dirigée le long de Oz, tandis que le faisceau sonde également polarisé circulairement peut détecter cette orientation. Comme la largeur en fréquence de l'excitation est nettement plus petite que la largeur du profil Doppler de la transition atomique utilisée, seuls sont orientés par le pompage les atomes dont la composante  $v_z$  de leur vitesse le long de Oz vérifie, à  $\Gamma_{eg}/k$  près, la condition :

$$v_z = (\Omega_0 - \Omega_L)/k \quad (*) \quad (4)$$

---

(\*) On a choisi d'orienter Oz dans le sens de propagation du faisceau sonde.

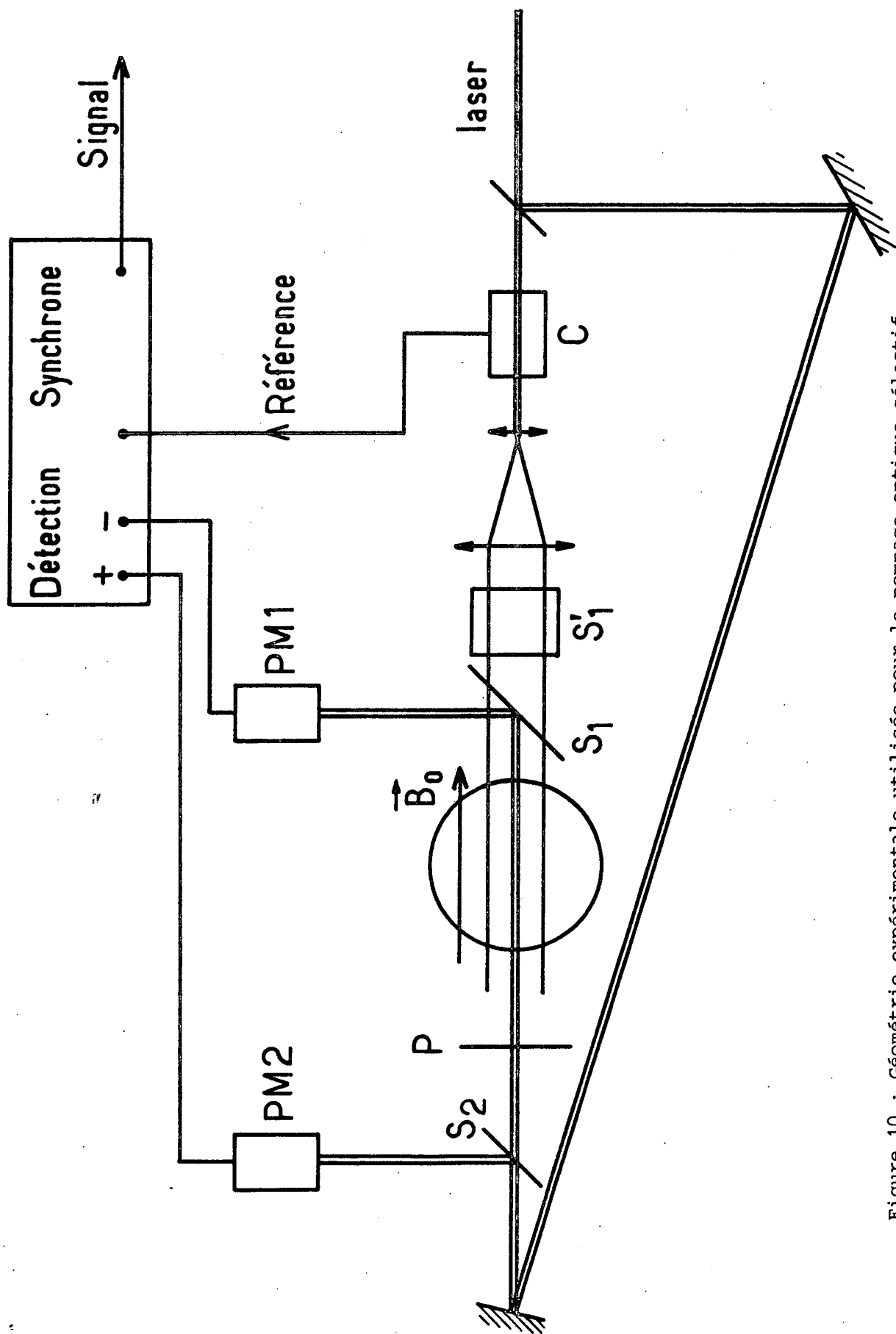


Figure 10 : Géométrie expérimentale utilisée pour le pompage optique sélectif en vitesse à un faisceau (V.S.O.P.).

tandis que le faisceau sonde détecte l'orientation des atomes de vitesse longitudinale  $-v_z$ .

A résonance, c'est-à-dire pour  $|\Omega_L - \Omega_0| \lesssim \Gamma_{eg}$ , le faisceau de pompage et le faisceau sonde interagissent avec les mêmes atomes de vitesse longitudinale  $v_z \approx 0$ , et l'on obtient un signal d'orientation. Hors résonance par contre ( $|\Omega_L - \Omega_0| > \Gamma_{eg}$ ), les deux faisceaux interagissent avec des atomes de vitesses longitudinales différentes et le signal d'orientation est nul. Quand on balaie la fréquence du laser autour de celle de la transition atomique, le signal d'orientation est donc une raie étroite centrée sur la fréquence atomique et correspondant aux atomes de vitesse longitudinale quasi-nulle.

Dans la description ci-dessus, nous avons implicitement négligé l'influence des collisions, ou supposé qu'elles détruisent totalement  $\langle J_z \rangle$ . En présence de collisions non totalement dépolarisantes pour le niveau g, le signal d'orientation comporte de plus une composante large (sa largeur peut être comparable à la largeur Doppler) liée aux atomes qui ont été pompés alors qu'ils avaient la vitesse longitudinale  $v_z$ , mais qui, après collision, sont détectés alors qu'ils ont la vitesse longitudinale  $-v_z$ .

Le raisonnement que nous venons de faire s'applique également aux autres observables que  $\langle J_z \rangle$ . Comme le profil d'orientation, le profil obtenu dans le cas d'un alignement ou d'un "trou de population" créé par le pompage est la superposition d'un pic étroit et d'un fond large dû aux collisions (\*). L'étude des profils obtenus par pompage optique sélectif en vitesses peut donc permettre d'obtenir des informations sur les propriétés des collisions subies par les atomes dans la cellule. Avant de présenter des profils obtenus expérimentalement, et des mesures réalisées avec cette méthode, nous donnons quelques indications sur la description théorique qui peut être faite du pompage optique sélectif en vitesses.

### 3) Rappel théorique

*non publiée!* On peut trouver cette description dans la référence [41]. Nous nous contenterons ici de citer quelques résultats extraits de cette publication.

---

(\*) Dans le cas où l'observable étudiée est la population dans le niveau métastable, celle-ci est totalement conservée lors des collisions.

Supposons dans un premier temps que la pression du gaz étudié soit suffisamment faible pour qu'on puisse négliger les collisions dans le niveau métastable g. La relaxation dans ce niveau est alors due uniquement au départ des atomes hors du faisceau de pompage et aux collisions sur les parois de la cellule. Le taux de relaxation correspondant est noté  $\gamma_0$ , et l'on suppose que  $\gamma_0 \ll \Gamma$ .

L'intensité du faisceau de pompage est suffisamment faible pour que les atomes évoluent en "régime de pompage"; on peut alors définir un taux de pompage  $\gamma_p$  qui s'écrit :

$$\gamma_p(v_z) = \frac{2\omega_1^2 \Gamma_{eg}}{\Gamma_{eg}^2 + (\Omega_L - \Omega_0 + k v_z)^2} \quad (5)$$

en posant :

$$\omega_1 = \frac{|\mathcal{D}| \mathcal{E}}{\hbar}$$

et  $\mathcal{D}^2 = |\langle J_g \parallel \vec{\mathcal{D}} \parallel J_e \rangle|^2$

On se place de plus dans le cas où l'on a  $\gamma_p \ll \gamma_0$ , ce qui signifie que les observables créées par le pompage ont le temps de relaxer entre deux processus d'absorption (régime de pompage quasi-linéaire). Dans ces conditions, l'évolution de la valeur moyenne  $\langle \mathcal{A} \rangle(v_z, t)$  d'une observable longitudinale dans le niveau g, pour l'ensemble des atomes de la classe de vitesse  $v_z$ , est régie par l'équation suivante :

$$\frac{d}{dt} \langle \mathcal{A} \rangle(v_z, t) = \gamma_p(v_z) N(v_z) \langle \mathcal{A} \rangle_p - \gamma_0 \left[ \langle \mathcal{A} \rangle(v_z, t) - \langle \mathcal{A} \rangle_0(v_z) \right] \quad (6)$$

Dans le deuxième membre de cette équation, le 1er terme décrit l'effet du pompage, et le 2ème terme celui de la relaxation;  $\langle \mathcal{A} \rangle_p$  représente la contribution apportée à l'observable  $\langle \mathcal{A} \rangle$  par un cycle de pompage;  $N(v_z)$  est la distribution d'équilibre des composantes  $v_z$  de la vitesse (distribution de Boltzmann de largeur  $\Delta = (kT/m)^{1/2}$ ;  $\langle \mathcal{A} \rangle_0(v_z)$  est la distribution d'équilibre de l'observable considérée :

$$\langle \mathcal{A} \rangle_0 \equiv \begin{cases} 0 & \text{si } \mathcal{A} \text{ représente l'orientation ou l'alignement} \\ N(v_z) & \text{si } \mathcal{A} \text{ représente la population} \end{cases}$$

La solution stationnaire de (6) montre que le pompage produit dans le niveau g un trou de population, une orientation ou un alignement pour les atomes situés dans un petit domaine de vitesse longitudinale de largeur  $2\Gamma_{eg}$  (la condition  $\gamma_p \ll \gamma_0$  assure que le pompage n'introduit pas d'élargissement par saturation).

L'observable considérée est détectée par le faisceau sonde dont la polarisation est choisie convenablement et dont l'intensité est supposée suffisamment faible pour qu'il ne puisse pas produire d'effet de pompage. Le signal associé à l'absorption de ce faisceau est donné par :

$$S(\Omega_L) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} dv_z \frac{\Gamma_{eg}}{\Gamma_{eg}^2 + (\Omega_L - \Omega_0 - k v_z)^2} \langle \mathcal{P} \rangle(v_z) \quad (7)$$

Cette intégrale se calcule aisément en utilisant le fait que  $\Gamma_{eg} \ll \Delta$ . Le signal obtenu en l'absence de collisions a la forme d'une courbe d'absorption de Lorentz centrée sur la fréquence atomique et dont la largeur  $2\Gamma_{eg}$  est la largeur naturelle de la transition considérée.

Si la pression est telle que les atomes métastables ont le temps de subir des collisions pendant leur temps de transit  $1/\gamma_0$  dans le faisceau de pompage (\*), et si ces collisions conservent partiellement l'observable considérée, l'équation (6) doit être réécrite de la façon suivante :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \langle \mathcal{P} \rangle(v_z, t) = & \gamma_p(v_z) N(v_z) \langle \mathcal{P} \rangle_p - \gamma(v_z) \langle \mathcal{P} \rangle(v_z, t) \\ & + \gamma_0 \langle \mathcal{P} \rangle_0(v_z) + \int_{-\infty}^{+\infty} dv'_z \langle \mathcal{P} \rangle(v'_z, t) K(v'_z, v_z) \end{aligned} \quad (8)$$

$\gamma(v_z)$  est le taux de relaxation total des atomes de la classe de vitesse considérée ; on peut écrire :

$$\gamma(v_z) = \gamma_0 + \gamma_c(v_z) \quad (**)$$

(\*) On supposera ici cependant que les collisions dans le niveau excité jouent un rôle négligeable ( $\gamma_c \ll \Gamma$ ).

(\*\*) En toute rigueur,  $\gamma_0$  est également une fonction de la vitesse des atomes.

où l'on a isolé le taux de relaxation  $\gamma_c(v_z)$  dû aux collisions avec les atomes ; celui-ci est relié à la probabilité par unité de temps  $P(v_z, v'_z)$  pour qu'un atome soit transféré par collision de la vitesse  $v_z$  à la vitesse  $v'_z$  :

$$\gamma_c(v_z) = \int_{-\infty}^{+\infty} dv'_z P(v_z, v'_z) \quad (9)$$

Nous admettrons en effet que le taux de relaxation par collision  $\gamma_c$  ne dépend pas de l'observable considérée : en d'autres termes, les collisions qui changent l'orientation ou l'alignement des atomes changent également leur vitesse.

L'équation (8) diffère de l'équation (6) par deux termes supplémentaires : un terme proportionnel à  $\gamma_c$  qui décrit le "départ" de l'observable  $\langle \mathcal{A} \rangle$  de la classe de vitesse  $v_z$  considérée, et un terme se présentant sous forme intégrale qui décrit le "retour" de cette observable des autres classes de vitesses vers la classe de vitesse  $v_z$ . Dans ce dernier terme apparaît un noyau de collisions que l'on peut écrire sous la forme :

$$K(v'_z, v_z) = P(v'_z, v_z) \xi(v'_z, v_z) \quad (10)$$

où  $\xi$  est la paramètre de conservation de l'observable considérée lors de la collision ( $0 \leq \xi \leq 1$ ) ; on néglige dans ce modèle les couplages éventuels par collisions entre les observables de symétries différentes.

L'équation (8) peut être résolue par itération par rapport au nombre de collisions [4<sup>1</sup>]. Il est possible par cette méthode de calculer la forme du fond large apparaissant dans un signal de pompage optique sélectif en vitesses à partir de noyaux de collision introduits phénoménologiquement. L'étude du profil du signal obtenu dans une telle expérience peut donc permettre d'obtenir des informations sur les collisions subies par les atomes dans la cellule et éventuellement de remonter à différents paramètres caractéristiques de ces collisions : sections efficaces de collisions, paramètre de conservation de l'observable étudiée lors de la collision, noyau intégral de collision [4<sup>2</sup>] [4<sup>3</sup>] [4<sup>4</sup>] [4<sup>5</sup>] ...



#### 4) Interprétation de quelques courbes expérimentales

Nous n'avons pas pour notre part mené d'étude systématique de la forme de ce profil. En effet, dans les conditions expérimentales dans lesquelles nous avons opéré, une telle étude ne permettrait pas de remonter aux paramètres caractéristiques des collisions. Dans le cas où la cellule est remplie d'un mélange d'hélium et de néon, il est sûr que deux noyaux de collisions au moins interviennent, associés respectivement aux collisions  $Ne^* - Ne$  et  $Ne^* - He$  et donc également deux paramètres de conservation  $\xi$  pour chaque observable. D'autre part, des résultats récents [45] ont montré que, même dans le cas du néon pur, deux types de collisions ont lieu dans la cellule pouvant être décrites respectivement par un noyau large et un noyau étroit, ce qui complique beaucoup l'étude du profil obtenu dans ces expériences.

Nous nous sommes donc limités pour obtenir des résultats quantitatifs à l'étude du pic étroit apparaissant dans le profil. Seules des indications générales ont été déduites de la largeur du fond et de son importance.

On peut montrer en particulier que, dans le cas où l'observable créée et détectée est de l'orientation ou de l'alignement, le rapport entre les surfaces du fond et du pic donne une idée du nombre de collisions que peut subir un atome avant d'être désorienté ou désaligné. Il suffit pour cela de reprendre l'équation (8) en supposant d'une part que le paramètre de conservation  $\xi$  est indépendant de  $v_z$  et  $v'_z$  et d'autre part que  $\gamma_c$  comme  $\gamma_0$  est indépendant de  $v_z$ . L'intégration de cette équation en régime stationnaire conduit à la relation :

$$\langle \mathcal{R} \rangle_p \int_{-\infty}^{+\infty} \gamma_p(v_z) N(v_z) dv_z = \left[ \gamma_0 + (1 - \xi)\gamma_c \right] \int_{-\infty}^{+\infty} dv_z \langle \mathcal{R} \rangle(v_z, t) \quad (11)$$

qui signifie que la quantité d'observable totale créée par le pompage est égale à la quantité d'observable détruite par collisions ou perdue par diffusion ;  $\gamma_0 + (1 - \xi)\gamma_c$  représente le taux de relaxation global de l'observable tel qu'il serait mesuré si la détection était faite avec une source large devant la largeur Doppler.

L'aire du pic et l'aire du fond peuvent s'écrire :

$$\mathcal{P}_p = \frac{\langle \mathcal{A}_0 \rangle_p}{\gamma_0 + \gamma_c} \int_{-\infty}^{+\infty} dv_z \gamma_p(v_z) N(v_z) \quad (12)$$

$$\text{et } \mathcal{P}_f = \langle \mathcal{A}_0 \rangle_p \left[ \frac{1}{\gamma_0 + (1-\xi)\gamma_c} - \frac{1}{\gamma_0 + \gamma_c} \right] \int_{-\infty}^{+\infty} dv_z \gamma_p(v_z) N(v_z) \quad (13)$$

Le rapport entre ces deux aires est donc simplement :

$$\frac{\mathcal{P}_f}{\mathcal{P}_p} = \frac{\xi \gamma_c}{\gamma_0 + (1-\xi)\gamma_c} \quad (14)$$

Dans le cas où la pression et les dimensions du faisceau de pompage sont telles que :

$$\gamma_0 \ll (1-\xi)\gamma_c$$

ce rapport est indépendant de la pression et vaut :

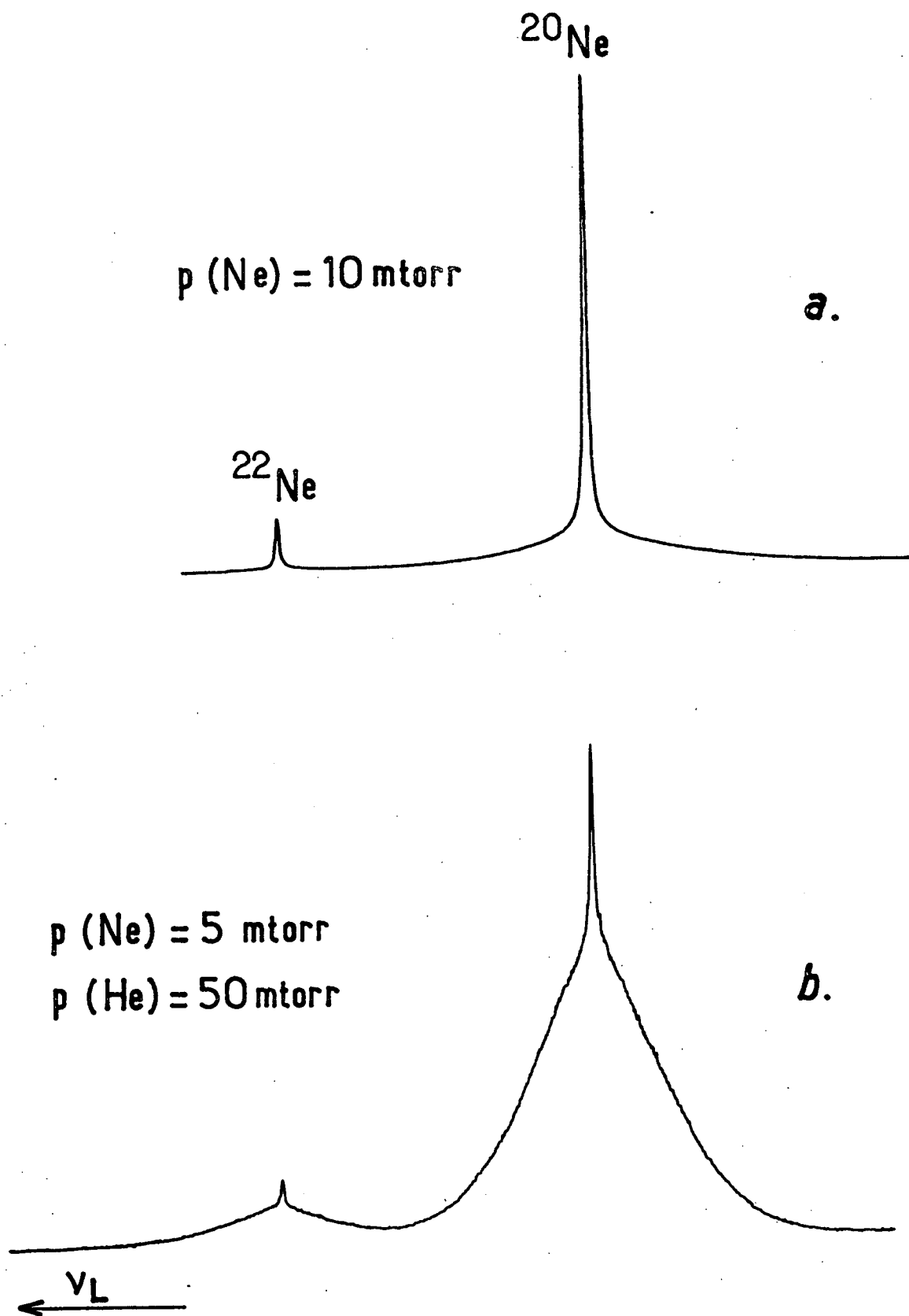
$$\frac{\mathcal{P}_f}{\mathcal{P}_p} = \frac{\xi}{1-\xi}$$

La figure 11 montre les profils d'orientation (\*) obtenus expérimentalement avec la raie de pompage à 6402 Å dans le cas d'une cellule remplie de 10 mtorr de néon pur (a) et dans le cas d'une cellule remplie de 5 mtorr de néon et 50 mtorr d'hélium (b) (\*\*). Les deux pics qui apparaissent correspondent aux isotopes  $^{20}\text{Ne}$  (90 %) et  $^{22}\text{Ne}$  (10 %) qui constituent le néon naturel. On voit qu'en présence d'hélium, le fond est principalement dû aux collisions  $\text{Ne}^* - \text{He}$  qui détruisent très peu l'orientation. Le rapport  $\mathcal{P}_f/\mathcal{P}_p$  correspondant est de l'ordre de 50, ce qui donne une valeur de  $1-\xi$  d'environ 2%. Dans le cas du néon pur par contre, le rapport  $\mathcal{P}_f/\mathcal{P}_p$  est de l'ordre de 2, ce qui donne une valeur de  $1-\xi$  d'environ 35%.

---

(\*) Pour enregistrer des profils d'orientation ou d'alignement, il est nécessaire de bien connaître le champ magnétique auquel sont soumis les atomes. A cet effet, une bonne compensation du champ magnétique terrestre peut être obtenue de la façon suivante : on réalise un profil d'orientation dans un champ transverse modéré (quelques dizaines de mG) et l'on annule le champ magnétique longitudinal en minimisant le signal ; le champ longitudinal étant nul, on annule ensuite les autres composantes du champ magnétique en maximisant le signal.

(\*\*) Ce deuxième enregistrement est extrait de la référence [41].



**Figure 11** : Profil d'orientation obtenu en V.S.O.P. avec la raie de pompage à  $\lambda = 6402 \text{ \AA}$  : a. dans 10 mtorr de néon pur ; b. dans un mélange contenant 5 mtorr de néon et 50 mtorr d'hélium. La distance en fréquence entre les raies des deux isotopes est de 1630 MHz.

On a vérifié que ce rapport est indépendant de la pression, dans la gamme de pression choisie (c'est-à-dire entre 5 et 100 mtorr de néon pur) et pour un diamètre du faisceau de pompage de 2 à 3 cm.

L'amplitude des signaux d'orientation obtenus en atténuant suffisamment le faisceau de pompage pour que les effets de saturation du pompage optique soient négligeables est typiquement de 3 % de la tension continue délivrée par PM1 : cette valeur correspond à une variation relative de la lumière absorbée  $\Delta L_A/L_A$  de 15 % pour un taux d'absorption de la cellule de 20 %.

Il est possible également d'obtenir par cette méthode un signal associé au "trou de population" créé par le pompage optique dans le niveau métastable, en utilisant un faisceau de pompage d'intensité modulée. La figure 12 représente les signaux de population obtenus, avec une cellule contenant 50 mtorr de néon pur, quand on utilise pour le pompage soit la raie à  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$  (a), soit la raie à  $6402 \text{ \AA}$  (b).

Dans le premier cas, le niveau supérieur de la transition (niveau  $2p_6$ ) se désexcite par émission spontanée vers d'autres niveaux que le métastable  $^3P_2$ . Le pompage a donc pour effet de dépeupler celui-ci. Dans le profil de population obtenu quand on balaie la fréquence du laser (figure 12-a), le fond a bien entendu une importance relative beaucoup plus grande que dans un profil d'orientation (dans le néon pur également). En effet, les collisions peuvent détruire l'orientation mais conservent totalement la population ( $\xi = 1$ ). L'importance du fond n'est alors limitée que par le temps de transit des atomes dans le faisceau de pompage ; on peut montrer que le rapport  $\mathcal{P}_f/\mathcal{P}_p$  est égal à  $\gamma_c/\gamma_0$  c'est-à-dire au nombre de collisions que peut subir un atome avant de quitter celui-ci.

Dans le cas de la transition à  $\lambda = 6402 \text{ \AA}$ , il ne devrait pas être possible, à priori, d'obtenir un tel signal car le niveau supérieur de la transition (niveau  $2p_9$ ) ne peut rayonner par émission spontanée que vers le niveau métastable  $^3P_2$ . L'existence d'un signal de population (environ 10 fois plus petit que celui qu'on obtient avec la première transition) montre cependant que, même avec cette transition, le pompage dépeuple légèrement le niveau métastable. On pourrait penser que cet effet est dû aux collisions dans le niveau excité qui peuvent transférer une partie des atomes dans d'autres niveaux de la configuration  $2p^5 3p$  (un tel transfert a déjà été ob-

servé dans le néon pour d'autres niveaux de cette configuration [<sup>46</sup>]). Le niveau métastable se trouverait ainsi dépeuplé de la même façon que précédemment (c'est-à-dire par émission spontanée vers d'autres niveaux) bien que de façon moins importante. Cependant, cette hypothèse est en contradiction avec le fait que le signal obtenu ne présente pas, contrairement au précédent, de fond large dû aux collisions : le "trou de population" créé ici a une durée de vie nettement plus courte que celui obtenu précédemment. D'autre part, ce signal paraît trop grand (<sup>☆</sup>) pour pouvoir être expliqué par un effet de saturation de la transition optique.

Son origine physique, que nous n'avons pas élucidée à l'heure actuelle, semble donc devoir être cherchée dans les processus qui peuvent faire que les deux niveaux ne forment pas un "système fermé" : couplage du métastable avec les autres niveaux de la configuration  $2p^5 3s$ , couplage avec la décharge, etc...

---

(<sup>☆</sup>) On s'attend a priori à ce que les signaux d'absorption saturée soient du même ordre de grandeur avec les deux raies de pompage à  $\lambda = 6402 \text{ \AA}$  et  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$ . Or, pour cette dernière raie, le rapport de leur taille avec celle des signaux de pompage optique doit être de l'ordre de  $\gamma/\Gamma$ , ce qui conduit à prédire des signaux d'absorption saturée 5 fois plus petits que ceux observés avec la raie à  $\lambda = 6402 \text{ \AA}$ .

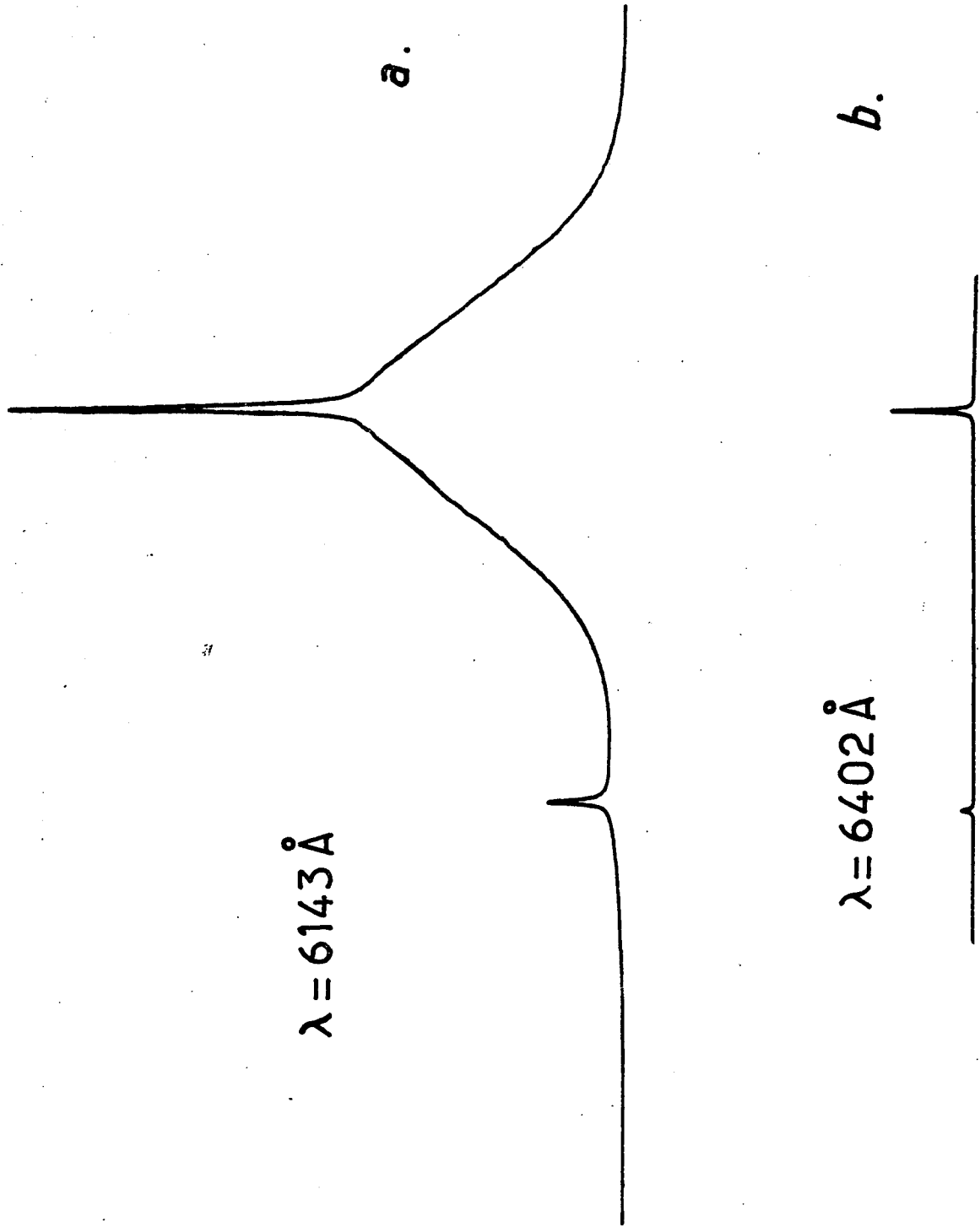


Figure 12 : Profil de population obtenu dans 50 mtorr de néon pur ;  
 a. avec la raie de pompage à  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$  ( $\Delta L_A / L_A \approx 15 \%$ ) ;  
 b. avec la raie de pompage à  $6402 \text{ \AA}$  ( $\Delta L_A / L_A \approx 1,5 \%$ ).

Comme il a été expliqué précédemment, nous n'avons cherché à obtenir, de l'étude de la forme du fond apparaissant dans les signaux de pompage optique sélectif en vitesses, que des renseignements qualitatifs sur les collisions. Par contre, nous avons utilisé la présence du pic étroit apparaissant dans ces signaux pour appliquer cette méthode à deux types de mesures décrites dans la suite de ce chapitre :

- mesures de sections efficaces de collisions, par une méthode de pompage optique modulé, décrites dans le § II ;

- mesures spectroscopiques, en particulier mesure de la structure hyperfine dans le niveau  $2p_9$  du  $^{21}\text{Ne}$ , décrites dans le § III.

## II. EXPERIENCES DE POMPAGE OPTIQUE MODULE

### 1) Principe

Lorsque la fréquence de modulation de l'excitation  $\omega$  devient comparable à l'inverse des temps caractéristiques d'évolution des atomes, l'étude de la modification du profil du signal permet d'avoir accès à des données concernant les collisions. Nous avons ainsi utilisé la méthode du pompage optique modulé, proposée par C. Cohen-Tannoudji et présentée dans [41] pour mesurer le taux de collision des atomes pour différentes pressions soit de néon pur soit de mélange hélium-néon.

Nous nous sommes limités à l'étude de l'évolution avec la fréquence  $\omega$  du pic d'orientation obtenu avec la raie de pompage à  $6402 \text{ \AA}$  (la polarisation du faisceau de pompage est modulée alternativement  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ ).

Le principe de cette méthode est simple : reprenons l'équation (8) en remplaçant  $\mathcal{N}_p$  par  $J_z$  et  $\langle \mathcal{N}_p \rangle_p$  par  $2J_0 \cos \omega t$  (excitation sinusoïdale) ; si l'on cherche sa solution sous la forme :

$$\langle J_z \rangle(v_z, t) = \langle \tilde{J}_z \rangle(v_z) e^{i\omega t} + \text{c.c.}$$

on trouve que  $\langle \tilde{J}_z \rangle(v_z)$  vérifie l'équation :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \langle \tilde{J}_z \rangle(v_z) &= \gamma_p(v_z) N(v_z) J_0 - (\gamma + i\omega) \langle \tilde{J}_z \rangle(v_z) \\ &+ \int_{-\infty}^{+\infty} dv'_z \langle \tilde{J}_z \rangle(v'_z) K(v'_z, v_z) \end{aligned} \quad (15)$$

où  $\gamma$  est le taux de relaxation total des atomes métastables de vitesse donnée :  
 $\gamma = \gamma_0 + \gamma_c$ .

Cette équation est semblable à l'équation (8) vérifiée par  $\langle J_z \rangle(v_z, t)$  où le taux de relaxation  $\gamma$  a été remplacé par  $\gamma + i\omega$ . L'orientation stationnaire des atomes n'ayant pas subi de collisions se déduit de (15) en ne tenant pas compte du terme intégral. Elle est de la forme :

$$\langle J_z \rangle(v_z, t) \propto \frac{J_0 e^{i\omega t}}{\gamma + i\omega} \frac{\Gamma_{eg} N(v_z)}{\Gamma_{eg}^2 + (\Omega_L - \Omega_0 + k v_z)^2} + c.c. \quad (16)$$

et le signal correspondant s'écrit :

$$S(\Omega_L, \omega, t) \propto \frac{2J_0}{\gamma^2 + \omega^2} (\gamma \cos \omega t + \omega \sin \omega t) \frac{\Gamma_{eg}^2}{\Gamma_{eg}^2 + (\Omega_L - \Omega_0)^2} \quad (17)$$

Le pic obtenu dans le profil du signal est donc déphasé par rapport à l'excitation d'un angle  $\phi$  tel que :

$$\text{tg}\phi = \frac{S_{\text{quadr.}}}{S_{\text{phase}}} = \frac{\omega}{\gamma} \quad (18)$$

où  $S_{\text{quadr.}}$  et  $S_{\text{phase}}$  sont les amplitudes respectives du pic en phase et en quadrature par rapport au pompage.

Ce déphasage s'explique simplement. A basse fréquence ( $\omega \ll \gamma$ ) la relaxation de l'orientation des atomes du pic est suffisante pour que cette orientation "suive" le pompage. A fréquence plus haute par contre ( $\omega \sim \gamma$ ), cette orientation n'a "plus le temps" de suivre le pompage, et se trouve déphasée par rapport à l'excitation d'un angle  $\phi$ .

La modulation du pompage a également pour effet de déformer et de déphaser dans le profil le fond résultant des collisions. Le calcul correspondant est présenté dans [41]. Chacun des termes à  $n$  collisions qui constitue ce fond est affecté différemment : plus  $n$  est élevé, plus le terme considéré est atténué et déphasé. A la limite des très hautes fréquences ( $\omega \gg \gamma$ ), le terme à 1 collision est prépondérant en opposition de phase (fond  $\propto 1/\omega^2$ ) tandis que le terme à 0 collision subsiste seul en quadrature (pic  $\propto 1/\omega$ ).



## 2) Résultats expérimentaux

Nous avons réalisé ces expériences de pompage optique modulé sélectif en vitesses dans une gamme de fréquences allant de 20 kHz à 150 kHz et pour différentes pressions et compositions du gaz contenu dans la cellule.

Pour mesurer le déphasage du pic obtenu dans le profil du signal d'orientation, il convient de régler soigneusement la phase de la détection synchrone de façon à enregistrer effectivement le signal en phase et en quadrature par rapport à l'excitation. A cet effet, avant chaque enregistrement, nous avons placé dans le faisceau de pompage (dont la polarisation est modulée alternativement  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  ( $\star$ )) une fibre optique précédée d'un analyseur circulaire. La lumière reçue par cette fibre est envoyée sur le photomultiplicateur PM1 de détection et la quadrature de la détection synchrone est réglée de façon à annuler le signal dans ces conditions. Ainsi, tout déphasage accidentel qui pourrait être introduit par la chaîne de détection intervient de la même façon pendant le réglage de la phase et pendant l'enregistrement du signal, et ne peut donc être la cause d'une erreur systématique.

Nous avons ainsi effectué des enregistrements du profil d'orientation en phase et en quadrature pour différentes fréquences et pour des valeurs données de la pression et de la composition du gaz contenu dans la cellule. La figure 13 montre les enregistrements obtenus pour  $\omega/2\pi = 80$  kHz avec une cellule contenant 10 mtorr de néon et 20 mtorr d'hélium. L'évolution des profils d'orientation avec la fréquence  $\omega$  est conforme qualitativement aux prévisions théoriques et aux résultats de [34] et [41] : en particulier, le fond est déphasé plus rapidement que le pic et, à haute fréquence, l'importance relative du pic par rapport au fond est accrue.

Nous avons mesuré pour chaque enregistrement la hauteur du pic (en extrapolant la forme du fond) et nous en avons déduit pour chaque fréquence la valeur de  $\tan\phi$ . Pour être sûrs de ne prendre en compte que l'orientation des atomes dans le niveau métastable g, de façon à mesurer effective-

---

( $\star$ ) Nous avons en général utilisé une modulation en créneaux, mais la détection était faite à la fréquence sinusoïdale pure  $\omega$ , de sorte que le modèle précédent s'applique à ces expériences (nous avons d'ailleurs vérifié qu'on obtenait les mêmes déphasages avec une modulation sinusoïdale du pompage). La modulation de la polarisation du faisceau est réglée de façon qu'après un analyseur linéaire aucune modulation d'intensité ne soit observée : ainsi, la circularité du faisceau de pompage prend des valeurs opposées pendant les deux alternances de la modulation.

ment le taux de relaxation dans ce niveau, nous avons à chaque fois fait un enregistrement de l'orientation détectée dans un champ magnétique transverse suffisamment fort pour détruire toute orientation dans le niveau métastable. Nous avons constaté qu'en appliquant un tel champ de 500 mG, il subsistait cependant un signal d'orientation constitué d'un pic étroit sans fond de collisions et d'amplitude à basse fréquence allant de 5 % (10 mtorr de néon) à 25 % (50 mtorr de néon) de la hauteur du pic d'orientation observé en champ nul ou longitudinal, et de signe opposé à celui-ci (<sup>☆</sup>). Nous avons donc systématiquement retranché ce signal parasite de façon à ce que notre mesure ne concerne que l'orientation du niveau métastable. La valeur de S mesurée, en phase ou en quadrature, est donc la somme des valeurs absolues des hauteurs des deux pics avec et sans champ magnétique transverse.

Le rapport  $S_{\text{quadr.}}/S_{\text{phase}}$  déduit de cette mesure est porté sur la figure 14 en fonction de la fréquence, pour différentes pressions de néon pur. Comme prévu théoriquement, ce rapport varie linéairement avec la fréquence. La pente de la droite obtenue permet de déduire le taux de relaxation  $\gamma$  correspondant à chaque pression. Les valeurs ainsi mesurées sont portées sur la figure 15 en fonction de la pression de néon. Comme on pouvait le prévoir, la variation de  $\gamma$  est linéaire en pression. La pente de cette droite donne accès à la section efficace de collision  $\text{Ne}^*-\text{Ne}$  des atomes de vitesse longitudinale quasi-nulle dans le niveau métastable  $^3P_2$ .

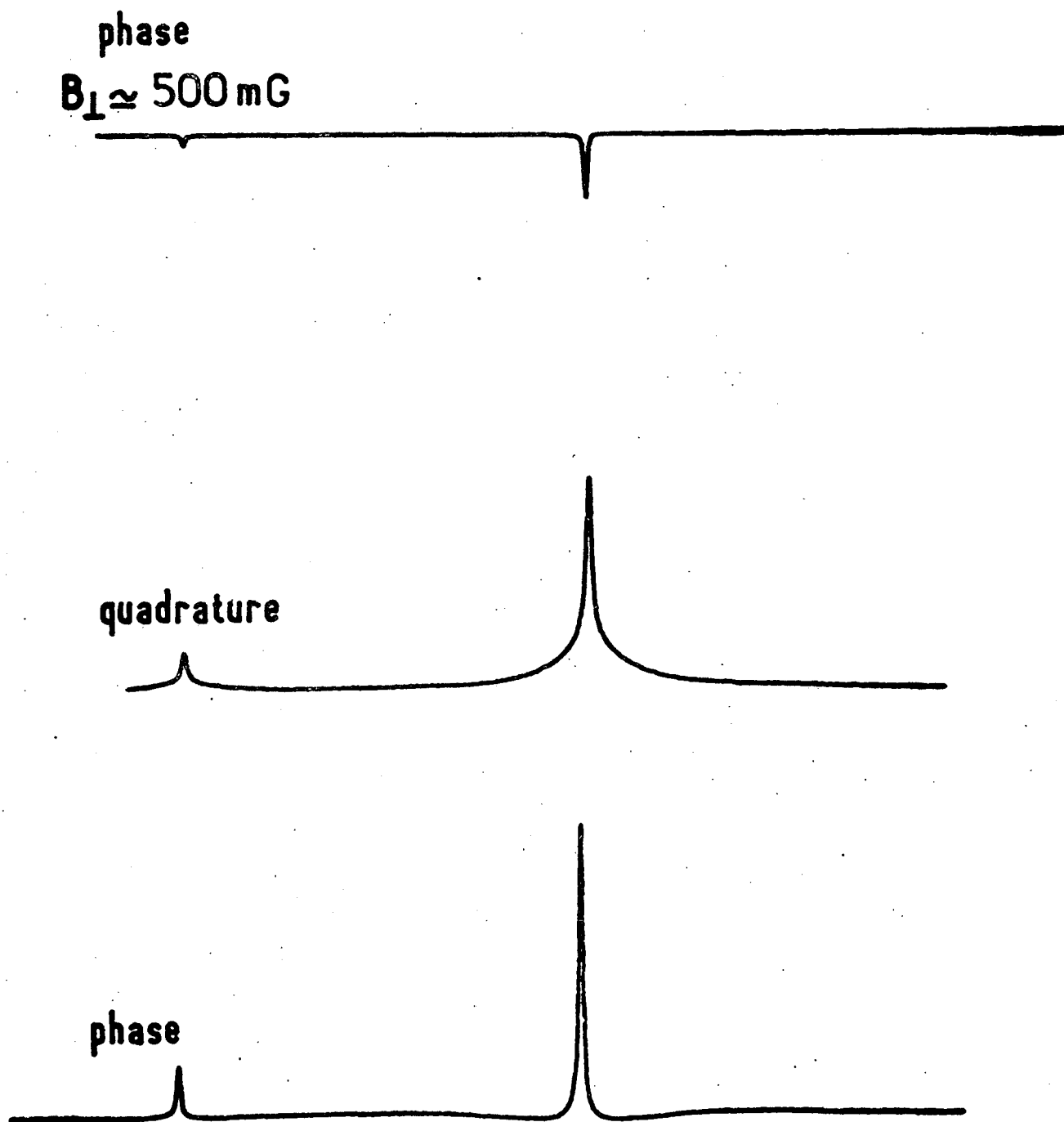
---

(<sup>☆</sup>) L'origine de ce signal d'orientation parasite n'a pas été élucidée à l'heure actuelle. On peut être tenté d'attribuer ce signal au niveau excité  $2p_9$ , qu'on oriente continûment par le processus même du pompage et dont la durée de vie est trop courte pour que son orientation soit sensible à un champ magnétique de 0,5 G. Cependant, cette hypothèse ne semble pas confirmée expérimentalement :

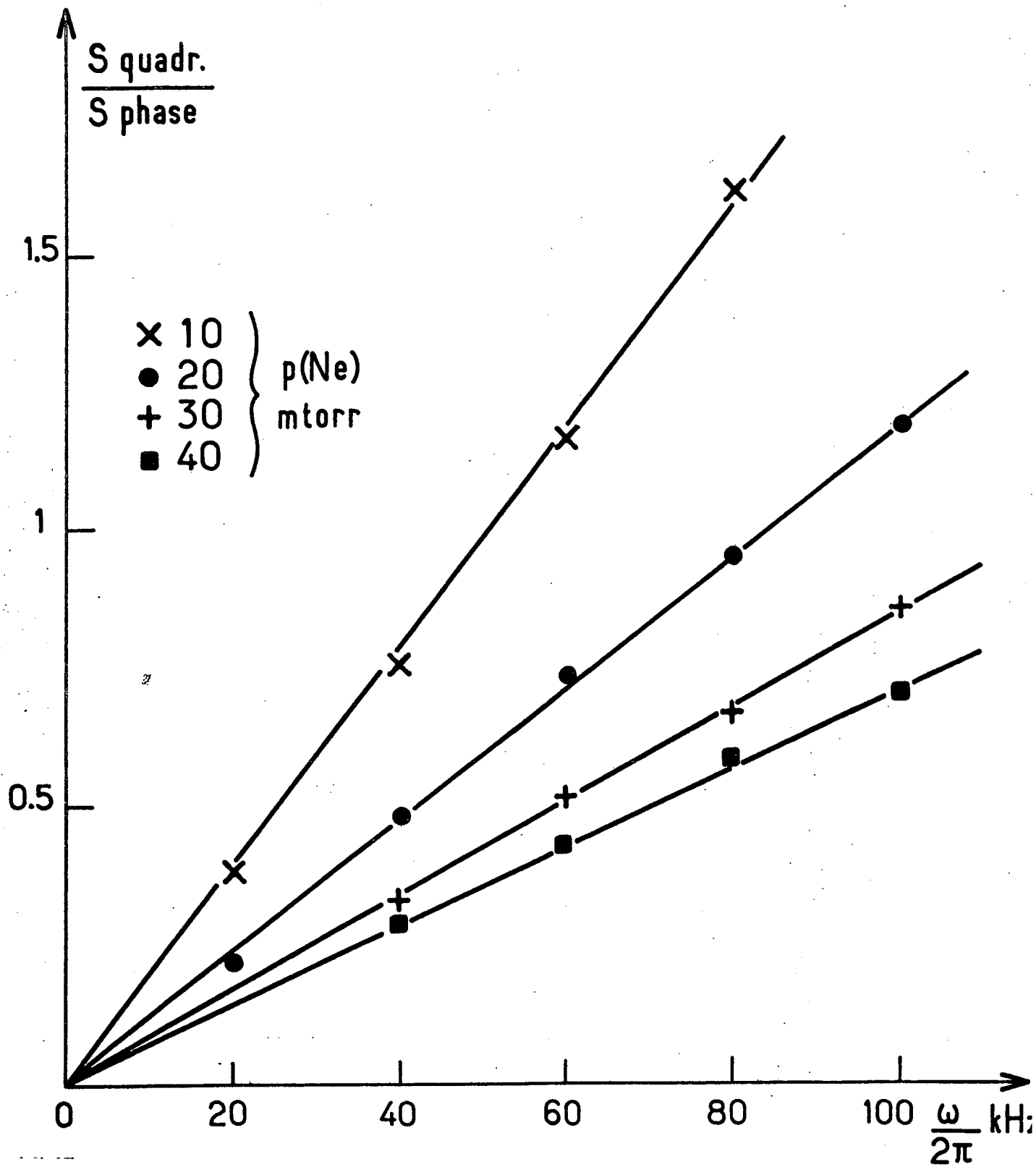
- le rapport entre ce signal et celui dû au niveau métastable devrait être du même ordre de grandeur que le rapport  $\gamma/\Gamma$  entre les taux de relaxation des deux niveaux ; ce dernier varie entre 40 et 160 selon la pression, tandis que le rapport entre les signaux varie entre 4 et 20 ;

- comme le signal dû au métastable, il se déphase linéairement avec la fréquence  $\omega$  et la durée de vie qu'on peut en déduire, par la même procédure que pour le niveau métastable, est de 190 ns environ (nous avons vérifié que cette valeur est indépendante de la pression), alors que la durée de vie du niveau excité est de 20 ns.

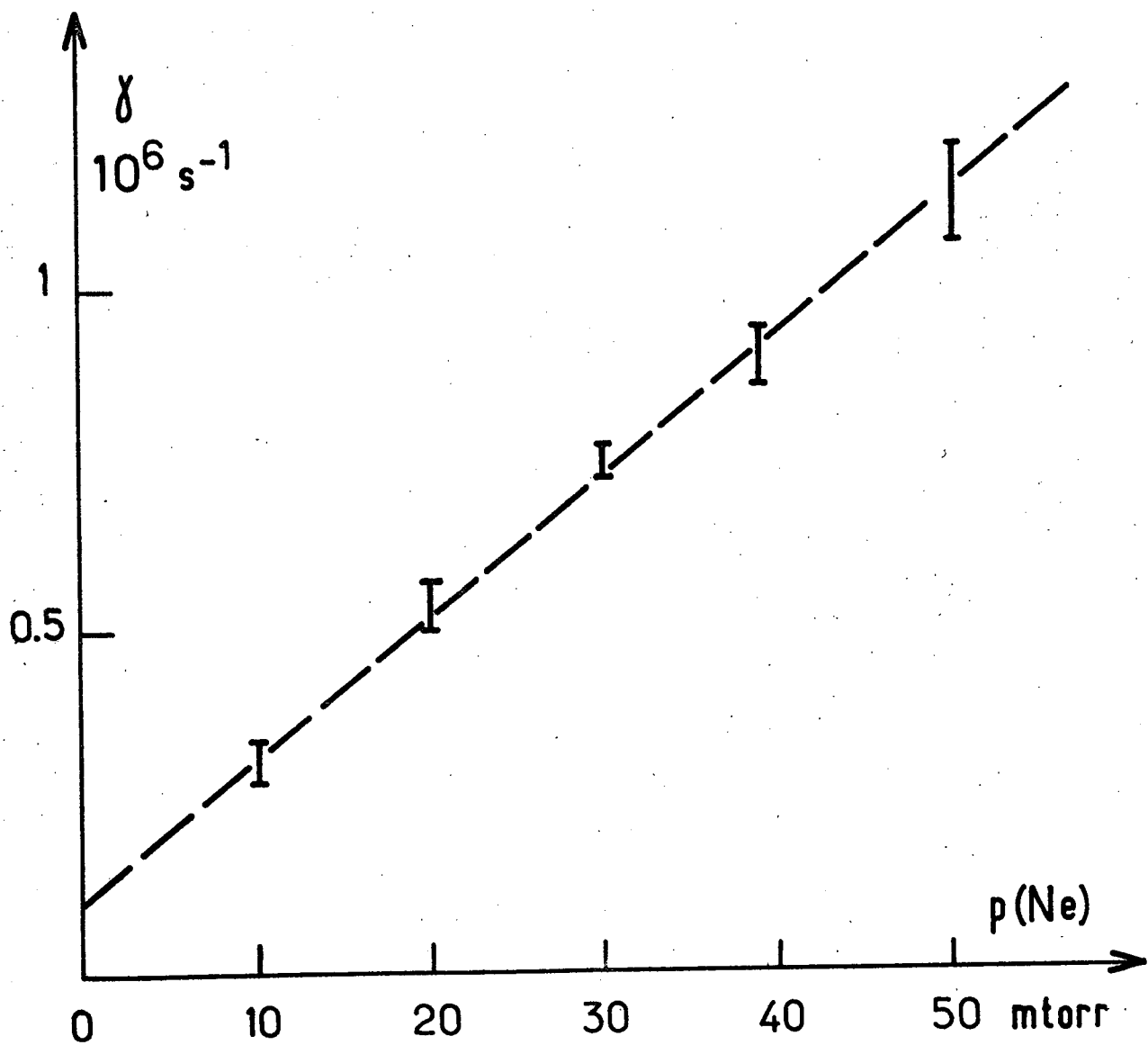
Ce signal a très probablement la même origine que le signal de population qu'on obtient avec la même transition (cf. § I) et qui possède des caractéristiques semblables.



**Figure 13** : Profils d'orientation obtenus avec la raie à  $\lambda = 6402 \text{ \AA}$  dans une expérience de pompage modulé à  $\omega/2\pi = 80 \text{ kHz}$  ; la cellule contient 10 mtorr de néon et 20 mtorr d'hélium. Le profil reproduit en haut de la page a été obtenu dans un champ magnétique transverse d'environ 500 mG.



**Figure 14** : Evolution, avec la fréquence de modulation, du rapport entre les hauteurs des pics obtenus en quadrature et en phase par rapport au pompage. Les quatre droites correspondent à quatre pressions différentes de néon pur.



**Figure 15** : Variation, avec la pression de néon, du taux de relaxation des atomes de néon métastables de vitesse longitudinale quasi-nulle.

Cette section efficace peut être déduite à partir de la relation :

$$\gamma_c = n \sigma v_r^* \quad (19)$$

où  $n$  est la densité d'atomes de néon dans la cellule et où  $v_r^*$  est la vitesse relative moyenne entre deux atomes de néon dont l'un a les 3 composantes de sa vitesse obéissant à une distribution de Boltzmann de largeur  $\Delta$ , tandis que l'autre n'a que deux composantes de sa vitesse obéissant à cette distribution, la troisième composante étant nulle ( $^{\star}$ ).

La section efficace mesurée ainsi a pour valeur :

$$\sigma(\text{Ne}^{\star} - \text{Ne}) = (90 \pm 5) \text{Å}^2$$

La droite de la figure 15 a une ordonnée à l'origine de  $0,1 \times 10^6 \text{ rad.s}^{-1}$  ce qui donne une idée de l'ordre de grandeur dans ces expériences de la contribution indépendante des collisions dans le taux de relaxation des atomes métastables.

Nous avons réalisé des mesures semblables dans des mélanges gazeux contenant 10 mtorr de néon et différentes pressions d'hélium. Les taux de relaxation  $\gamma$  obtenus pour les différents mélanges sont reportés sur la fig. 16 en fonction de la pression d'hélium. Comme dans le cas du néon pur, leur variation est linéaire avec la pression, et permet donc de déduire la section efficace de collision  $\text{Ne}^{\star} - \text{He}$  des atomes de vitesse longitudinale quasi-nulle dans le niveau métastable  $^3P_2$ . On utilise pour cela la même formule (19) que précédemment en prenant pour  $n$  la densité d'atomes d'hélium dans la cellule, et pour  $v_r^*$  la vitesse relative moyenne entre un atome d'hélium ayant les trois composantes de sa vitesse obéissant à une distribution de Boltzmann et un atome de néon n'ayant que deux composantes de sa vitesse obéissant à cette distribution, la troisième étant nulle ( $^{\star\star}$ ). La section efficace mesurée a pour valeur :

$$\sigma(\text{Ne}^{\star} - \text{He}) = (73 \pm 5) \text{Å}^2$$

( $^{\star}$ ) Pour deux atomes de vitesse quelconque, on a  $v_r = \sqrt{2} \bar{v}$  avec  $\bar{v} = \sqrt{\frac{8kT}{\pi m}}$  ; tandis qu'ici  $v_r^{\star} = \frac{1}{2} (1 + \pi/2) \bar{v}$ , c'est-à-dire  $v_r^{\star} \approx 1,3 \bar{v}$ .

( $^{\star\star}$ ) Pour deux atomes de vitesse quelconque, on a

$$v_r = \sqrt{\frac{8kT}{\pi \mu}} \quad \text{avec} \quad \mu = \frac{m_{\text{Ne}} m_{\text{He}}}{m_{\text{Ne}} + m_{\text{He}}} ; \quad \text{tandis qu'ici} \quad v_r^{\star} \approx 0,97 \sqrt{\frac{8kT}{\pi \mu}}$$

### III. MESURE DE LA STRUCTURE HYPERFINE DU NIVEAU $2p_9$ DU $^{21}\text{Ne}$ ; DEPLACEMENTS

#### ISOTOPIQUES DES RAIES A 6402 Å ET 6266 Å

##### 1) Introduction

La présence d'un pic étroit dans le profil en fréquence des signaux de V.S.O.P. permet d'utiliser cette méthode pour des mesures spectroscopiques sans effet Doppler. Nous avons déjà vu en particulier que le déplacement isotopique  $^{20}\text{Ne} - ^{22}\text{Ne}$  est directement accessible quand la cellule contient du néon naturel. On peut également mesurer des structures hyperfines dans le néon 21, qui possède un spin nucléaire  $I = \frac{3}{2}$ .

Nous avons mesuré par cette méthode la structure hyperfine du niveau  $2p_9$  (configuration  $2s^2 2p^5 3p$ ) du  $^{21}\text{Ne}$  et testé notre dispositif en mesurant également celle déjà connue du niveau  $2p_5$  de la même configuration. Les déplacements isotopiques correspondant aux deux transitions utilisées ont été déterminés [47].

Rappelons que la structure hyperfine du niveau métastable  $^3P_2$  (configuration  $2s^2 2p^5 3s$ ) est connue avec une très grande précision. Elle a été mesurée sur un jet atomique par la méthode de Rabi, par Grosf et al. [48]. D'autre part, des techniques expérimentales variées ont été appliquées à la mesure des structures hyperfines des niveaux de la configuration  $2s^2 2p^5 3p$ . La méthode des croisements de niveaux a été utilisée par E. Giacobino pour les niveaux  $2p_2, 2p_4, 2p_5, 2p_6, 2p_7$  et  $2p_8$  [49], et par X. Husson et J.P. Grandin pour le niveau  $2p_{10}$  [50]. C. Delsart et J.C. Keller ont mesuré la structure hyperfine du niveau  $2p_{10}$  par la méthode dite "absorption line narrowing" [51].

Cependant, celle du niveau  $2p_9$  de la même configuration n'avait pas jusqu'à présent été mesurée expérimentalement, peut-être parce que ce niveau de moment cinétique  $J = 3$  ne peut se désexciter par émission spontanée que vers le niveau métastable  $^3P_2$ . Or, dans une expérience de croisements de niveaux, il est préférable de détecter la fluorescence à une longueur d'onde différente de celle de l'excitation.

L'utilisation de la méthode du V.S.O.P. est au contraire bien adaptée pour ce niveau, puisque la détection se fait par l'absorption du faisceau sonde à la même longueur d'onde que l'excitation.

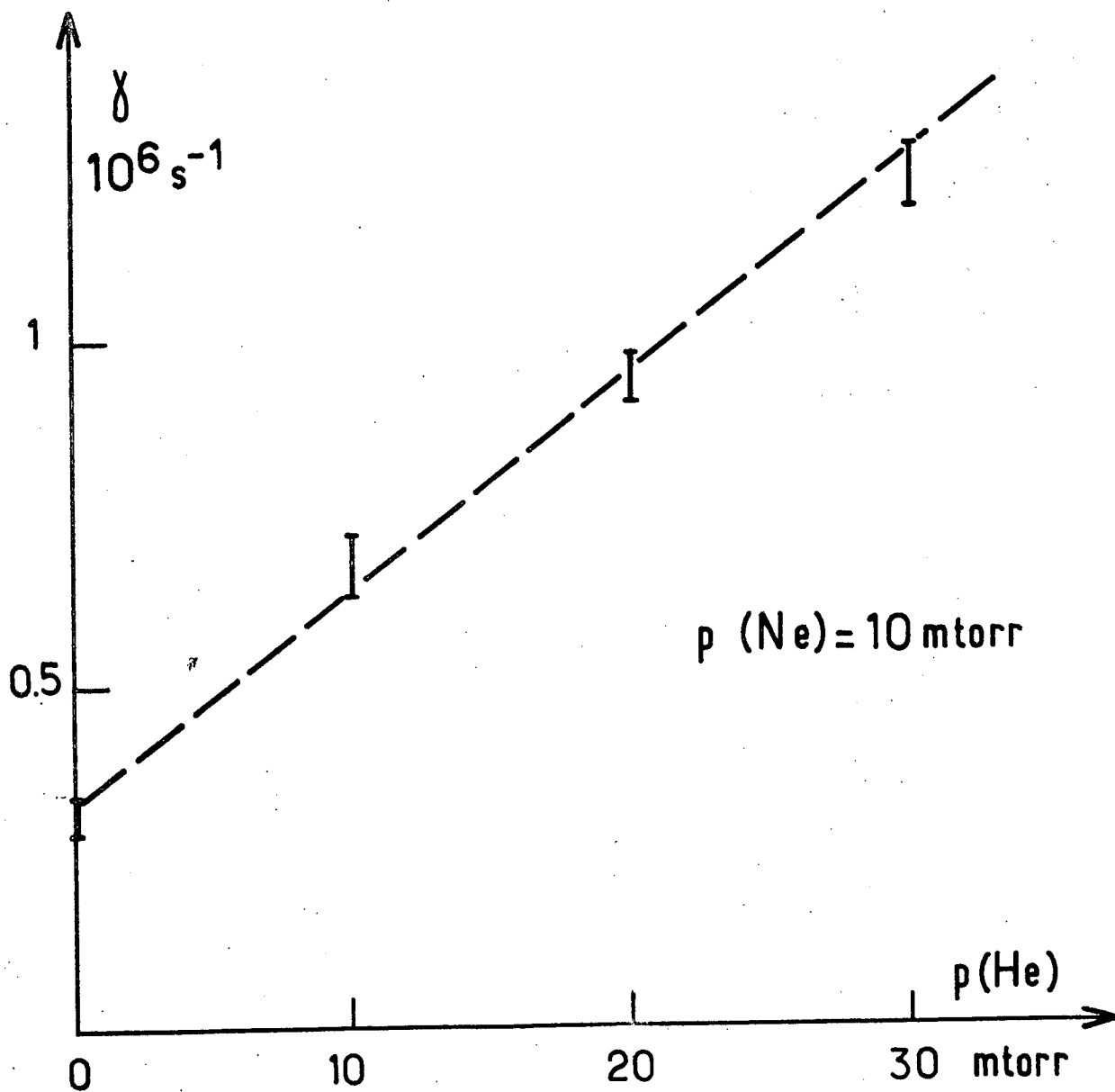


Figure 16 : Variation, avec la pression d'hélium, du taux de relaxation des atomes de néon métastables de vitesse longitudinale quasi-nulle.



## 2) Dispositif expérimental

Le principe du montage expérimental a déjà été décrit précédemment. Dans cette expérience cependant quelques particularités sont à noter.

Etant donné la rareté et donc le prix élevé de l'isotope 21 du néon, nous avons utilisé ici des cellules scellées. Ces cellules en pyrex sont sphériques de diamètre 6 cm et munies d'un réservoir d'environ 2 litres. Les deux cellules utilisées contenaient chacune 50 mtorr d'hélium jouant le rôle de gaz tampon, et respectivement 12 mtorr de néon 21 et 5 mtorr de néon naturel (pour la mesure des déplacements isotopiques).

Le "jitter" du laser à colorant a été réduit à  $\pm 2$  MHz en utilisant un miroir  $M_1$  d'extrémité de cavité particulièrement petit et donc léger : la fréquence de résonance mécanique de l'ensemble  $M_1$  + cale piézoélectrique est ainsi plus élevée (environ 7 kHz), ce qui permet d'augmenter le gain de l'asservissement en fréquence du laser.

Un même colorant, mélange de rhodamine 590 et de rhodamine 640, convient pour les longueurs d'onde des deux transitions de pompage 6402 Å et 6266 Å.

Le balayage en fréquence du laser est étalonné à l'aide d'un Pérot-Fabry plan-focal de 50 cm de longueur dont on enregistre les pics de transmission simultanément avec les signaux de pompage optique (son intervalle entre ordres est de 75 MHz). Ce Pérot-Fabry est semblable à celui qui est décrit dans [52]. Il est maintenu sous vide par une pompe ionique ; sa température n'est pas régulée.

Comme nous le verrons plus loin il a été, dans la plupart de ces mesures, préférable de moduler l'intensité du faisceau de pompage à polarisation (linéaire) constante : on obtient ainsi des signaux de pompage hyperfin liés à la dépopulation ou à la repopulation sélective des sous-niveaux hyperfins du niveau métastable. La fréquence de modulation que nous avons utilisée est  $\omega = 40$  kHz. Cette valeur de la fréquence permet, quand la détection se fait en phase avec l'excitation, d'éliminer en grande partie le signal large dû aux collisions  $Ne^* - He$  qui transfèrent les différences de populations hyperfines de la classe de vitesses pompée aux autres classes de vitesses.

### 3) Structure des spectres obtenus

Quand la fréquence du laser est balayée au voisinage d'une transition atomique, différentes sortes de résonances étroites apparaissent. Nous allons les présenter dans le cas de la transition  $1s_5$  ( $^3P_2$ ) -  $2p_9$  ( $^3D_3$ ) à 6402 Å, où les deux niveaux considérés ( $J = 2$  et  $J = 3$ ) possèdent chacun 4 sous-niveaux hyperfins ( $I = 3/2$ ), notés F pour le niveau métastable et F' pour le niveau excité.

La discussion de ce paragraphe sera faite dans l'hypothèse où le processus de pompage est un "cycle fermé" (\*) qui n'affecte pas la population totale du niveau métastable  $^3P_2$  (la population totale du niveau excité est négligeable). Par contre, le rôle du pompage est de répartir différemment la population du niveau métastable entre les sous-niveaux hyperfins  $F = 1/2, 3/2, 5/2, 7/2$  (\*\*). On s'attend donc à voir apparaître dans le signal des résonances qu'on peut classer en résonances directes correspondant aux atomes de vitesse longitudinale nulle le long du faisceau de pompage, et des résonances croisées ("cross-over") correspondant à des vitesses longitudinales non-nulles. Les premières sont centrées sur les fréquences des transitions atomiques, tandis que les secondes sont situées à mi-distance de deux résonances directes.

Dans le cas de la transition considérée, on peut distinguer plus précisément 4 sortes de résonances qui sont schématisées sur la figure 17.

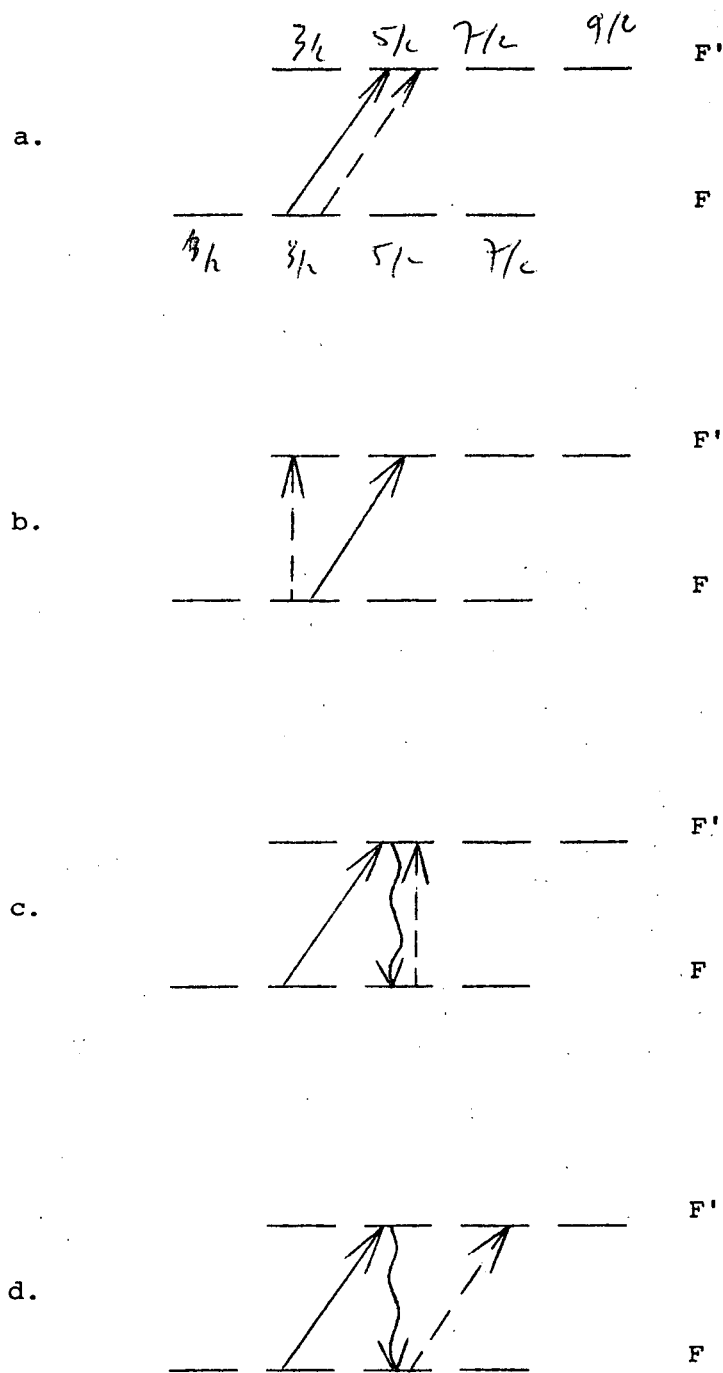
a. 9 résonances directes associées aux transitions optiques entre les différents sous-niveaux F et F'. Elles s'accompagnent d'une diminution de l'absorption du faisceau sonde. Si les collisions changeant F' dans le niveau excité étaient négligeables, la transition  $F = 7/2 \leftrightarrow F' = 9/2$  ne pourrait pas produire de pompage hyperfin : il n'y aurait que 8 résonances directes.

b. 7 résonances croisées associées à deux transitions atomiques possédant en commun un sous-niveau métastable F. Elles s'accompagnent d'une diminution de l'absorption du faisceau sonde.

---

(\*) Nous avons discuté à la fin du § I dans quelle mesure cette hypothèse était valide.

(\*\*) Dans le cas d'une polarisation de pompage linéaire, des effets d'alignement de chaque sous-niveau F peuvent également intervenir en plus du pompage hyperfin.



**Figure 17** : Schéma des 4 types de résonances pouvant être induites par pompage hyperfin. On a représenté le cas de la transition  $1s^5(^3P_2) - 2p_9(^3D_3)$  où  $F = 1/2, 3/2, 5/2, 7/2$  et  $F' = 3/2, 5/2, 7/2, 9/2$ .

Le trait plein symbolise le faisceau de pompage, le trait pointillé la sonde, le trait ondulé l'émission spontanée.

c. 7 résonances croisées associées à deux transitions atomiques possédant en commun un sous-niveau excité  $F'$ . Elles s'accompagnent d'une augmentation de l'absorption du faisceau sonde.

d. 14 résonances croisées (appelées souvent résonances de fluorescence) associées à deux transitions atomiques n'ayant aucun sous-niveau en commun, le sous-niveau supérieur de l'une étant cependant relié par émission spontanée au sous-niveau inférieur de l'autre. Elles s'accompagnent d'une augmentation de l'absorption de la vapeur.

On voit que le signe des résonances observées est précieux pour l'identification de ces résonances. La même expérience faite en polarisation (pompage modulé  $\sigma^+ - \sigma^-$ , et sonde circulaire) donne le même nombre de résonances, mais leur signe n'est pas déterminé par le type (a, b, c ou d) de la résonance (\*). Le dépouillement du spectre obtenu est plus difficile alors, c'est pourquoi nous avons préféré un montage où seule l'intensité du pompage est modulée.

Dans le cas de la transition  $1s_3 ({}^3P_0) - 2p_5$  à 6266 Å, le niveau métastable ne possède qu'un seul niveau hyperfin et le niveau excité 3 sous-niveaux  $F' = 1/2, 3/2, 5/2$  (il s'agit d'un niveau de  $J = 1$ ). Il est cependant possible d'obtenir des signaux de dépopulation sélective en vitesse du niveau métastable, car le niveau supérieur de la transition est connecté par émission spontanée à d'autres niveaux [effets auxquels viennent s'ajouter ceux des collisions de transfert à partir du niveau excité (\*\*)]. On s'attend donc à observer 3 résonances directes (de type a.) et 3 résonances croisées (de type b.) toutes de même signe.

Les spectres obtenus quand on balaie la fréquence du laser autour des deux transitions considérées (respectivement à 6402 Å et 6266 Å) sont reproduits sur les figures 18 et 19. Les deux cellules mentionnées plus haut ont été placées l'une derrière l'autre sur le trajet des faisceaux de pompage et de détection. On peut observer ainsi simultanément les raies des trois

---

(\*) Pour cette transition, et à la pression considérée le pompage est de type Kastler (dépopulation - repopulation) (cf. [34]). Dans ce cas, les résonances directes ( $F, F'$ ) telles que  $F' = F + 1$  sont de signe opposé à celui des autres résonances directes. De même, les résonances croisées d'un type donné, ont un signe qui dépend du couple de transitions considéré.

(\*\*) Les collisions  $Ne^* - He$  qui couplent les populations des différents niveaux de la configuration  $2p^5 3p$  ont été étudiées dans [53].

isotopes. Les résonances directes (a) sont identifiées par les valeurs de F et F'. Seul le type des résonances croisées (b, c ou d) a été précisé.

#### 4) Dépouillement des spectres et résultats

##### a) Identification des résonances

Dans le spectre de la raie 6402 Å (fig. 18), une vingtaine de résonances environ sont apparentes qui doivent être identifiées pour mesurer les écarts entre sous-niveaux hyperfins. Les deux résonances du  $^{20}\text{Ne}$  et du  $^{22}\text{Ne}$  sont faciles à repérer car elles apparaissent seules dans le spectre obtenu avec une cellule remplie de néon naturel. Elles correspondent à la dépopulation par le pompage du niveau  $^3\text{P}_2$  de ces isotopes, effet que nous avons présenté dans le § I dans le cas du néon pur, et qui intervient également en présence d'hélium.

L'identification des résonances du  $^{21}\text{Ne}$  peut être faite à partir de leur signe, de leur intensité et de leur position théorique. Leur signe a déjà été présenté plus haut. Nous nous intéresserons ici à leurs deux autres caractéristiques.

##### • Intensités des différentes résonances

En supposant toujours le cycle de pompage fermé, et en ne tenant pas compte des collisions changeant F ou F', on peut calculer les intensités respectives des résonances à partir des probabilités d'absorption et d'émission spontanée associées aux différentes transitions hyperfines  $F \leftrightarrow F'$ . Ces probabilités, pour une transition dipolaire électrique sont respectivement proportionnelles aux coefficients, que nous noterons  $A_{FF'}$  et  $E_{F'F}$ , définis par :

$$A_{FF'} = \frac{|\langle F || \vec{D} || F' \rangle|^2}{2F + 1}$$

$$E_{F'F} = \frac{|\langle F' || \vec{D} || F \rangle|^2}{2F' + 1}$$

(20)

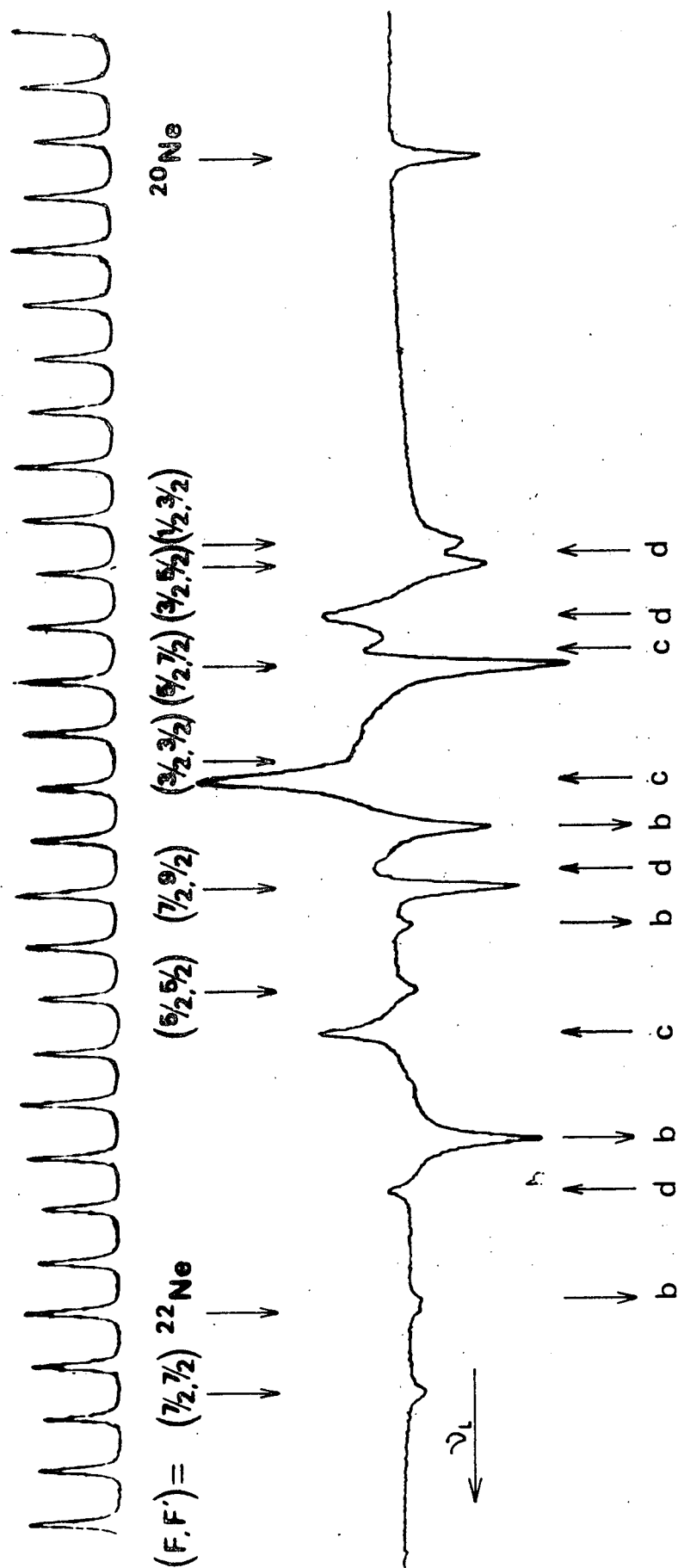


Figure 18 : Spectre obtenu quand on balaise la fréquence du laser autour de la transition  $1s_5 ({}^3P_2) - 2p_9 ({}^3D_3)$  à  $\lambda = 6402 \text{ \AA}$ . L'intervalle entre ordres du Fabry-Pérot de marquage est de 75 MHz.

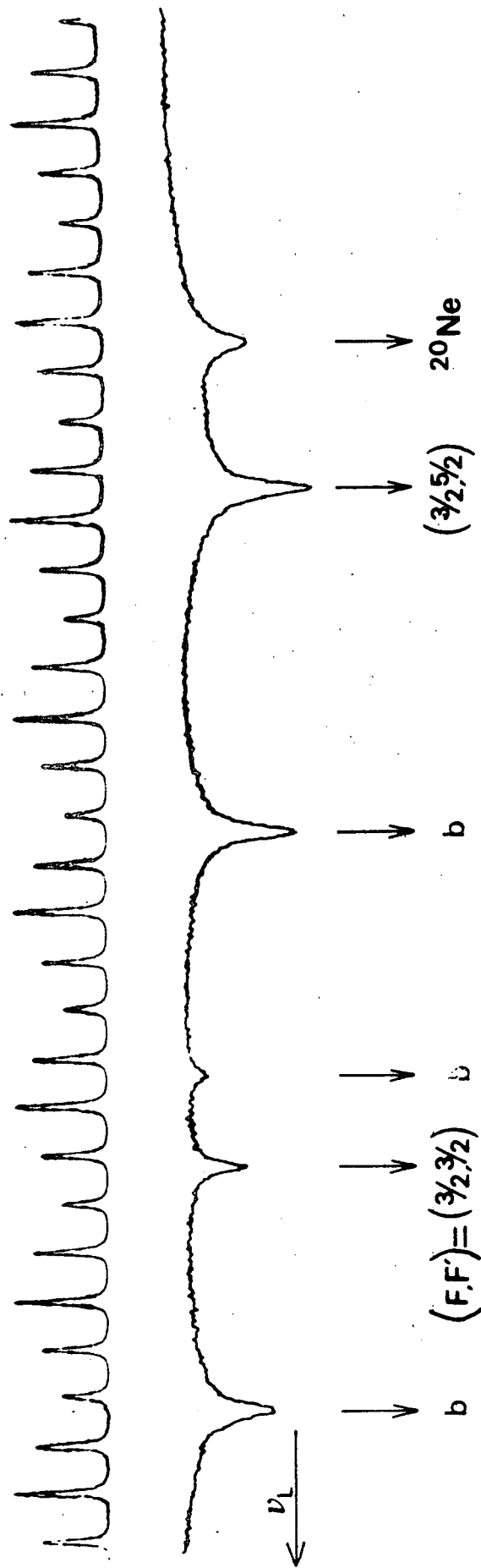


Figure 19 : Spectre obtenu quand on balaiie la fréquence du laser autour de la transition  $1s_3 ({}^3P_0) - 2p_5$  à  $\lambda = 6266 \text{ \AA}$ .

L'élément de matrice réduit de l'opérateur dipolaire électrique  $\vec{D}$  entre les sous-niveaux F et F' peut être relié à celui de  $\vec{D}$  entre les niveaux e et g de l'isotope pair par :

$$\langle F || \vec{D} || F' \rangle = \sqrt{(2F+1)(2F'+1)} \begin{Bmatrix} I & J_e & F' \\ 1 & F & J_g \end{Bmatrix} (-1)^{J_e+I+F+1} \langle J_g || \vec{D} || J_e \rangle \quad (21)$$

Les coefficients  $A_{FF'}$  et  $E_{F'F}$  s'écrivent donc :

$$A_{FF'} = (2F'+1) \begin{Bmatrix} I & J_e & F' \\ 1 & F & J_g \end{Bmatrix}^2 \quad (22)$$

et

$$E_{F'F} = (2F+1) \begin{Bmatrix} I & J_e & F' \\ 1 & F & J_g \end{Bmatrix}^2 \quad (*) \quad (23)$$

Nous noterons  $\alpha_{F'F}$  la probabilité relative qu'à 1 sous-niveau F' de se désexciter par émission spontanée vers le niveau F :

$$\alpha_{F'F} = (2J_e + 1) E_{F'F} \quad (24)$$

Soit  $\delta\nu_{F_1, F_2}$  et  $\delta\nu'_{F'_1, F'_2}$  les écarts en fréquence entre les deux sous-niveaux considérés  $F_1$  et  $F_2$  de g ou  $F'_1$  et  $F'_2$  de e ; si  $E_F$  et  $E_{F'}$  sont les énergies respectives des sous-niveaux hyperfins du niveau métastable et du niveau excité, ces écarts sont définis par :

$$h \delta\nu_{F_1, F_2} = E_{F_1} - E_{F_2}$$

$$h \delta\nu'_{F'_1, F'_2} = E'_{F'_1} - E'_{F'_2}$$

(\*) On a :  $\sum_{F'} A_{FF'} = \frac{1}{2J_g + 1} \quad \forall F$

et  $\sum_F E_{F'F} = \frac{1}{2J_e + 1} \quad \forall F'$



Les intensités des différentes résonances sont proportionnelles à :

$$A_{FF'}^2 (1 - \alpha_{F',F}) \text{ pour les résonances directes (a)}$$

$$A_{FF_1'} A_{FF_2'} (2 - \alpha_{F_1',F} - \alpha_{F_2',F}) \exp \left( - \frac{\delta v_{F_1',F_2'}^2 c^2}{2 v_0^2 \Delta^2} \right)$$

pour les résonances croisées (b)

$$A_{F_1F'} A_{F_2F'} (\alpha_{F',F_1} + \alpha_{F',F_2}) \exp \left( - \frac{\delta v_{F_1',F_2'}^2 c^2}{2 v_0^2 \Delta^2} \right)$$

pour les résonances croisées (c)

$$A_{F_1F_1'} A_{F_2F_2'} (\alpha_{F_1',F_2} + \alpha_{F_2',F_1}) \exp \left[ - \frac{(\delta v_{F_1',F_2'} - \delta v_{F_1',F_2'})^2 c^2}{2 v_0^2 \Delta^2} \right]$$

pour les résonances croisées (d)

$\Delta$  est la largeur Doppler, homogène à une vitesse, et définie par :

$$\Delta = (kT/m)^{1/2} ; v_0 = \Omega_0/2\pi \text{ est la fréquence de la transition atomique considérée.}$$

Ces expressions permettent de comparer les intensités théoriques des différentes résonances. On trouve ainsi par exemple que parmi les résonances directes, celles correspondant aux deux transitions  $F = 5/2 \leftrightarrow F' = 3/2$  et  $F = 7/2 \leftrightarrow F' = 5/2$  sont beaucoup moins intenses (au moins 100 fois moins) que les six autres, ce qui peut expliquer que nous ne les ayons pas observées expérimentalement. De la même façon, parmi les résonances croisées, celles que nous avons observées sont celles dont les intensités théoriques sont les plus grandes, et qui sont suffisamment détachées des autres par leur position :

$$\begin{aligned} \text{résonances (b) } (F ; F_1' , F_2') &= ( 5/2 ; 3/2 , 7/2 ) \\ & ( 5/2 ; 5/2 , 7/2 ) \\ & ( 7/2 ; 5/2 , 9/2 ) \\ & ( 7/2 ; 7/2 , 9/2 ) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{résonances (c) } (F_1 , F_2 ; F') &= ( 1/2 , 3/2 ; 3/2 ) \\ & ( 3/2 , 5/2 ; 5/2 ) \\ & ( 5/2 , 7/2 ; 7/2 ) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{résonances (d) } (F_1 , F_2 ; F_1' , F_2') &= ( 1/2 , 3/2 ; 3/2 , 5/2 ) \\ & ( 3/2 , 5/2 ; 3/2 , 5/2 ) \\ & ( 3/2 , 5/2 ; 5/2 , 7/2 ) \\ & ( 5/2 , 7/2 ; 5/2 , 7/2 ) \end{aligned}$$

Notons cependant que les intensités relatives obtenues ne correspondent pas aux intensités expérimentales : les collisions changeant  $F$  ou  $F'$  jouent probablement un rôle dans ce désaccord.

• Positions des résonances

Dans le cas où la structure hyperfine est petite devant les autres structures, les énergies des sous-niveaux hyperfins se déduisent directement des constantes d'interaction hyperfine dipolaire magnétique et quadrupolaire électrique  $A(\alpha, J)$  et  $B(\alpha, J)$  (\*) par la formule [54] :

$$E(\alpha, J, F) = A(\alpha, J)C_F/2 + B(\alpha, J)D_F \quad (25)$$

où

$$C_F = F(F + 1) - I(I + 1) - J(J + 1)$$

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

Nous avons utilisé, pour calculer les énergies des différents sous-niveaux, les valeurs expérimentales des constantes  $A$  et  $B$  du niveau  $1s_5$  ( $^3P_2$ ) [48], et les valeurs, calculées par S. Liberman par une méthode semi-empirique [55], des constantes  $A$  et  $B$  dans le niveau  $2p_9$ . L'ensemble des positions relatives des résonances possibles peut ainsi être déterminé a priori. Les positions calculées sont alors comparées à celles des résonances obtenues expérimentalement.

L'identification des différentes résonances a ainsi pu être faite sans trop de difficulté malgré leur nombre. Elle a été confirmée a posteriori par le fait que les constantes  $A$  et  $B$  du niveau  $2p_9$  déduites expérimentalement d'un certain nombre d'écartés entre résonances ainsi identifiées permettent de mettre en très bon accord l'ensemble des positions calculées des résonances avec les positions observées.

Remarquons que l'une des résonances a été identifiée comme la résonance directe associée à la transition  $F = 7/2 \leftrightarrow F' = 9/2$ , ce qui tend à indiquer l'existence de collisions changeant  $F'$  dans le niveau excité.

---

(\*)  $\alpha$  symbolise ici l'ensemble des nombres quantiques autres que  $J$  nécessaires pour déterminer le niveau de structure fine considéré.

b) Mesure des structures hyperfines

Les écarts d'énergie entre sous-niveaux hyperfins d'un niveau donné étant des combinaisons linéaires des constantes A et B dans ce niveau, il suffit de connaître deux tels écarts pour pouvoir en déduire les valeurs de A et B. Pour cela, on mesure les distances en fréquence entre résonances et on les compare de façon à éliminer les écarts d'énergie entre sous-niveaux hyperfins de l'autre niveau de la transition.

Prenons l'exemple de la mesure de la structure hyperfine dans le niveau métastable  $1s_5$  ( $^3P_2$ ), obtenue à partir de résonances directes uniquement (fig. 18). La mesure de la distance en fréquence entre les deux résonances directes  $(F, F') = (3/2, 5/2)$  et  $(5/2, 5/2)$  et de la distance entre les deux résonances directes  $(F, F') = (5/2, 7/2)$  et  $(7/2, 7/2)$  donne directement les écarts en fréquence  $\delta\nu_{3/2, 5/2}$  et  $\delta\nu_{5/2, 7/2}$  dans le niveau métastable. Les constantes A et B peuvent en être déduites à partir de la formule (25) :

$$A(1s_5) = - 1/5 \times \delta\nu_{3/2, 5/2} - 1/7 \times \delta\nu_{5/2, 7/2}$$

$$B(1s_5) = + 4/5 \times \delta\nu_{3/2, 5/2} - 4/7 \times \delta\nu_{5/2, 7/2}$$

Nous avons fait par contre la mesure de la structure hyperfine dans le niveau  $2p_9$ , à partir des 4 résonances croisées de type (b) observées, dont la liste est donnée plus haut. La distance entre les deux premières donne directement l'écart en fréquence  $\delta\nu'_{3/2, 5/2}$  dans le niveau  $2p_9$  et la distance entre les deux suivantes l'écart  $\delta\nu'_{5/2, 7/2}$  dans le même niveau. Les constantes A et B dans le niveau  $2p_9$  s'en déduisent ensuite simplement :

$$A(2p_9) = 1/5 \times \delta\nu'_{3/2, 5/2} - 3/7 \times \delta\nu'_{5/2, 7/2}$$

$$B(2p_9) = 2 \times \delta\nu'_{3/2, 5/2} - 10/7 \times \delta\nu'_{5/2, 7/2}$$

Dans le cas de la mesure de la structure hyperfine du niveau excité  $2p_5$ , qui se fait à partir du dépouillement du spectre obtenu avec la raie à 6266 Å (fig. 19), la situation est beaucoup plus simple ; il n'y a que deux écarts en fréquence à mesurer, par exemple  $\Delta\nu'_{1/2, 5/2}$  et  $\Delta\nu'_{1/2, 3/2}$  qui se déduisent directement des écarts entre résonances directes ou des écarts entre résonances croisées et résonances directes, et l'on a :

$$A(2p_5) = - 3/10 \Delta v'_{1/2, 5/2} + 2/15 \Delta v'_{1/2, 3/2}$$

$$B(2p_5) = - 2/10 \Delta v'_{1/2, 5/2} + 8/15 \Delta v'_{1/2, 3/2}$$

On peut utiliser pour cette transition aussi bien le spectre obtenu en modulant l'intensité du faisceau de pompage (fig. 19 : toutes les résonances ont le même signe <sup>(\*)</sup>), que celui qu'on obtient en modulant alternativement  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  la polarisation de ce faisceau et en utilisant un faisceau sonde de polarisation circulaire (les signes des résonances sont alors différents : cf. [34]).

Pour tous les dépouillements que nous avons effectués, nous avons estimé l'incertitude expérimentale sur chaque écart entre deux résonances à 3 MHz environ. La dérive en température du Fabry-Pérot de marquage a été évaluée en comparant deux enregistrements identiques faits successivement : elle introduit une erreur systématique de moins de 1 MHz pour une structure de 2500 MHz, qui est négligeable par rapport à l'incertitude précédente liée au "pointage" des résonances.

Les valeurs obtenues expérimentalement pour les constantes A et B de chacun des niveaux considérés sont récapitulées dans le tableau 1 où elles sont comparées aux valeurs obtenues dans d'autres expériences ainsi qu'aux valeurs calculées théoriquement. Dans le cas du niveau  $2p_9$ , il s'agit de la première détermination expérimentale de ces constantes. Pour les trois niveaux, nos mesures sont en accord avec les prévisions théoriques. Pour les niveaux  $1s_5$  et  $2p_5$ , elles sont également en accord avec les mesures précédentes.

Dans le cas du niveau  $2p_9$ , nous avons confirmé les valeurs des constantes A et B en recalculant avec ces valeurs l'ensemble des positions des résonances observées dans le spectre de la raie à 6402 Å. Nous avons ainsi trouvé un très bon accord avec l'expérience. Nous avons de plus vérifié que cet accord n'est plus aussi satisfaisant lorsqu'on fait varier A ou B d'une quantité correspondant à l'incertitude obtenue expérimentalement.

---

(\*) Dans le spectre obtenu de cette façon, la résonance directe  $(F, F') = (3/2, 1/2)$  n'est pas visible ; c'est celle dont l'amplitude théorique est la moins grande.

Niveau	Notre mesure	Autres mesures	Calculs théoriques
$1s_5$	A = - 267,5 ± 0,8 B = - 113,3 ± 3,2	A = - 267,68 ± 0,03 B = - 111,55 ± 0,10 } <sup>[48]</sup>	A = - 267,9 B = - 111,6 } <sup>[55]</sup>
$2p_9$	A = - 142,5 ± 1,5 B = - 113 ± 8		A = - 138,3 B = - 111,6 } <sup>[55]</sup> A = - 143 ± 3 <sup>[56]</sup>
$2p_5$	A = - 436,5 ± 1,2 B = + 43,3 ± 2,2	A = - 436,6 ± 0,6 B = + 41,8 ± 1,2 } <sup>[49]</sup>	A = - 433,2 B = + 43,2 } <sup>[55]</sup> A = - 439 ± 3 <sup>[50]</sup>

TABEAU 1

Valeurs en MHz des constantes de structure hyperfine des niveaux  $1s_5$ ,  $2p_9$  et  $2p_5$  du  $^{21}\text{Ne}$ .

c) Mesure des déplacements isotopiques

A partir des valeurs des constantes de structure hyperfine que nous avons mesurées pour les deux niveaux  $2p_9$  et  $2p_5$  et de celles déjà connues expérimentalement pour le niveau  $1s_5$ , il est possible de déterminer où se situe dans chacun de nos spectres le centre de gravité de la transition pour le  $^{21}\text{Ne}$ . On peut alors en déduire une mesure du déplacement isotopique  $\delta\sigma(20 - 21)$  entre les deux isotopes  $^{20}\text{Ne}$  et  $^{21}\text{Ne}$  pour les deux transitions étudiées. Nous avons également mesuré les déplacements isotopiques  $\delta\sigma(20 - 22)$  à partir des spectres obtenus avec la cellule de néon naturel ; ces derniers étaient déjà connus expérimentalement <sup>[57]</sup>.

Le tableau 2 donne les valeurs que nous avons obtenues pour ces différents déplacements isotopiques ainsi que les valeurs mesurées dans <sup>[57]</sup>. Les deux mesures sont en bon accord. Pour les deux transitions, la relation :

$$\frac{\delta\sigma(20 - 21)}{22} = \frac{\delta\sigma(20 - 22)}{42} \quad (26)$$

est vérifié aux incertitudes de mesure près. Cette relation exprime que pour le néon le déplacement isotopique est dû uniquement à un effet de masse, comme on s'y attend pour un atome léger. La même propriété avait déjà été mise en évidence pour d'autres transitions du néon [58].

Transition	Notre mesure	Mesure précédente [57]
6402 Å	$\delta\sigma(20 - 22) = 1630 \pm 3$ $\delta\sigma(20 - 21) = 856 \pm 7$	$\delta\sigma(20 - 22) = 1629 \pm 3$
6266 Å	$\delta\sigma(20 - 22) = 1651 \pm 3$ $\delta\sigma(20 - 21) = 866,5 \pm 6,5$	$\delta\sigma(20 - 22) = 1647 \pm 3$

TABLEAU 2

Valeurs en MHz des déplacements isotopiques  $\delta\sigma(20 - 22)$  et  $\delta\sigma(20 - 21)$  pour les deux transitions  $1s_5 - 2p_9$  (6402 Å) et  $1s_3 - 2p_5$  (6266 Å).

## CHAPITRE C

### POMPAGE OPTIQUE DOUBLEMENT SÉLECTIF EN VITESSES

#### INTRODUCTION

La méthode du pompage optique sélectif en vitesses à un faisceau, présentée dans le chapitre précédent, ne permet de sélectionner qu'une seule composante de la vitesse des atomes, celle qui est portée par l'axe commun Oz au faisceau de pompage et au faisceau de détection. Tous les effets que l'on peut étudier par cette méthode, en particulier ceux liés aux collisions, sont moyennés sur les deux autres composantes  $v_x$  et  $v_y$  de cette vitesse. En généralisant cette méthode au cas de deux faisceaux de pompage non colinéaires et en utilisant un effet de pompage croisé entre ces deux faisceaux, il est possible de sélectionner deux composantes de la vitesse des atomes : on peut réaliser ainsi des expériences de pompage optique doublement sélectif en vitesses, qui sont présentées dans ce chapitre.

## I - PRINCIPE DE LA METHODE

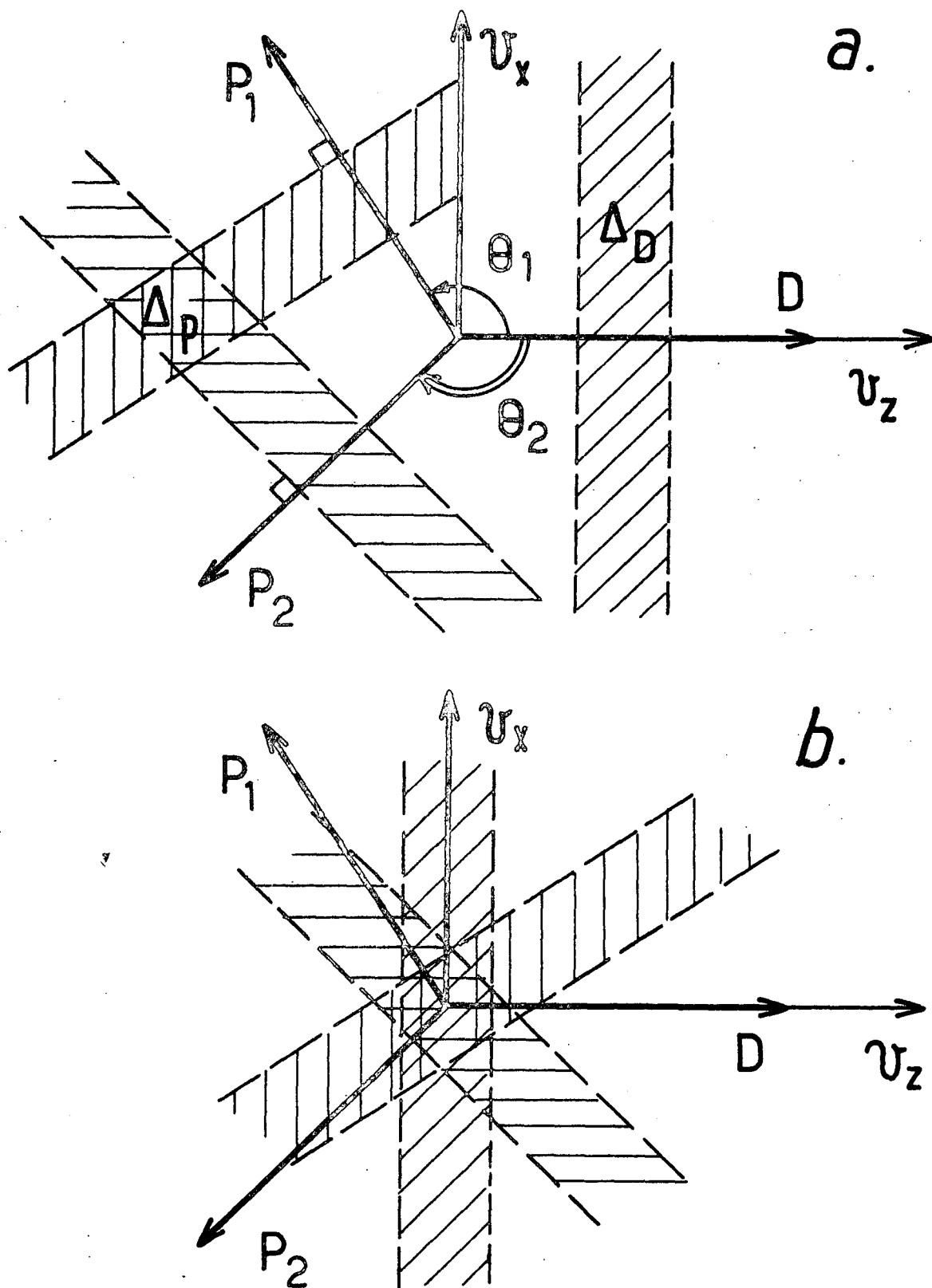
### 1) Double sélection en vitesses

Considérons une expérience où on utilise deux faisceaux de pompage  $P_1$  et  $P_2$  et un faisceau de détection  $D$ , tous trois issus du même laser monomode balayable. Dans la cellule contenant les atomes, les trois faisceaux sont coplanaires mais non colinéaires. La sélection en vitesses qui résulte de cette géométrie est schématisée sur la Figure 20, qui représente l'espace des vitesses associé aux atomes. Les atomes en résonance avec le faisceau  $P_1$  (resp.  $P_2$ ) ont la projection  $v_1$  (resp.  $v_2$ ) de leur vitesse le long de  $P_1$  (resp.  $P_2$ ) qui vérifie la relation :

$$\left| \Omega_L(v_1/c) - (\Omega_L - \Omega_0) \right| \lesssim \Gamma \quad (27)$$

L'extrémité du vecteur vitesse de ces atomes est donc située dans une bande, hachurée sur la Figure 20, perpendiculaire à  $P_1$  (resp.  $P_2$ ). Les atomes en résonance à la fois avec les deux faisceaux de pompage ont l'extrémité de leur vecteur vitesse située dans un petit domaine  $\Delta_p$  doublement hachuré, intersection des deux bandes associées à  $P_1$  et  $P_2$ . De la même façon, les





**Figure 20** : Schéma dans l'espace des vitesses associé aux atomes : chacun des faisceaux détermine une bande hachurée correspondant aux atomes en interaction résonnante avec lui ; dans b., contrairement à a., la fréquence du laser est exactement centrée sur la fréquence atomique.

atomes en résonance avec le faisceau de détection D ont la projection de leur vitesse sur Oz qui vérifie une condition analogue à (27). L'extrémité de leur vecteur vitesse se trouve donc située dans la bande hachurée  $\Delta_D$  perpendiculaire à D représentée sur la Figure 20.

Hors de la résonance exacte, c'est-à-dire lorsque  $|\Omega_L - \Omega_0| \gg \Gamma$  et dans la géométrie considérée sur la figure, les zones  $\Delta_P$  et  $\Delta_D$  correspondant aux atomes soit "doublement pompés" soit détectés n'ont pas de recouvrement, comme représenté sur la Figure 20-a, et aucun atome n'est en interaction résonnante avec tous les faisceaux. A résonance cependant, et comme représenté sur la Figure 20-b, un tel recouvrement se produit et le petit domaine triplement hachuré situé au centre de la figure définit un ensemble d'atomes interagissant simultanément avec les trois faisceaux. On sélectionne ainsi les atomes de vitesse quasi-nulle dans le plan des faisceaux (la composante  $v_y$  de la vitesse, perpendiculaire à ce plan, ne joue aucun rôle).

## 2) Pompage optique à deux faisceaux

Pour obtenir cette double sélection sur la vitesse des atomes, il est nécessaire d'observer un "effet de pompage croisé" entre les deux faisceaux  $P_1$  et  $P_2$ , c'est-à-dire par exemple un effet en  $I_1 \times I_2$  où  $I_1$  et  $I_2$  sont leurs intensités respectives (effet de "saturation croisée"). Différents effets de ce type sont envisageables. On peut par exemple imaginer de généraliser le principe de l'absorption saturée à deux faisceaux de pompage : le premier faisceau crée un "trou de population" dans le niveau du bas de la transition atomique utilisée (niveau g) tandis que le deuxième faisceau modifie ce "trou de population". Mais des effets plus spécifiques au pompage optique sont également possibles et ce sont ceux-là que nous nous

proposons d'étudier dans ce chapitre. Chaque faisceau est supposé suffisamment peu intense pour ne créer qu'une saturation optique négligeable, mais sa monochromaticité entraîne des effets de sélectivité en vitesses par le pompage optique. Le premier faisceau modifie les populations des différents sous-niveaux Zeeman du niveau  $g$ . Son effet peut être décrit en terme d'observables créées dans le niveau  $g$  : population (\*), orientation, ou alignement. L'effet de saturation croisée est alors la modification par le deuxième faisceau de pompage des observables créées par le premier.

### 3) Exemple simple

Plaçons-nous dans un cas simple de façon à présenter un effet possible de pompage optique croisé à deux faisceaux [60]. La polarisation des faisceaux  $P_1$  et  $P_2$  est choisie circulaire, tandis que le faisceau  $D$  mesure le dichroïsme circulaire de la vapeur contenue dans la cellule. Le signal obtenu est donc proportionnel à l'orientation du niveau étudié, selon l'axe  $Oz$ , colinéaire à  $D$ .

Il est bien connu que l'action, sur un niveau donné, d'un faisceau lumineux polarisé circulairement, est double [38]. Les populations des sous-niveaux Zeeman sont modifiées différemment par le processus d'absorption et il en résulte une orientation  $\langle \vec{J} \rangle_0$  dirigée selon la direction du faisceau de

---

(\*) des modifications de population peuvent se produire si le niveau  $g$  se décompose, non seulement en sous-niveaux Zeeman, mais aussi en plusieurs niveaux de structure fine ou hyperfine (pompage hyperfin du sodium par exemple), ou encore si le niveau  $g$  est un niveau métastable (trou de population introduit par le pompage dans le cas où le niveau  $e$  se désexcite vers d'autres niveaux).

pompage. D'autre part, les sous-niveaux Zeeman sont déplacés différemment, et ces déplacements peuvent être décrits comme l'effet d'un champ magnétique fictif  $\vec{B}_f$  sur le niveau [59]. Comme  $\langle \vec{J} \rangle_0$ ,  $\vec{B}_f$  est dirigé le long de la direction du faisceau lumineux et change de sens quand la polarisation de celui-ci passe de  $\sigma^+$  à  $\sigma^-$ .

Dans ces conditions, on voit qu'un effet de "pompage croisé" peut résulter de l'action, sur l'orientation  $\langle \vec{J} \rangle_0$  créée par un premier faisceau, du champ magnétique  $\vec{B}_f$  associé à un deuxième faisceau. La Figure 21 représente cette situation : le faisceau  $P_2$  crée l'orientation  $\langle \vec{J} \rangle_0$  qui évolue sous l'action du champ  $\vec{B}_f$  dû au faisceau  $P_1$ . On suppose que les atomes sont soumis à un champ magnétique  $\vec{B}_0$ , dirigé le long de Oz, et on admet dans un premier temps que le champ magnétique total vu par les atomes est suffisamment grand pour que leur orientation ait le temps de précesser un grand nombre de fois autour de lui pendant la durée de vie de l'orientation. Dans ce cas, la composante stationnaire de l'orientation perpendiculaire au champ magnétique est nulle. Un atome en résonance avec le faisceau  $P_2$  seul voit son orientation  $\langle \vec{J} \rangle$  précesser autour de  $\vec{B}_0$ , et la valeur stationnaire de l'orientation  $\langle J_z \rangle$  détectée est simplement obtenue en projetant  $\langle \vec{J} \rangle_0$  sur l'axe Oz commun au champ magnétique et à la détection. Par contre, pour les atomes en résonance à la fois avec  $P_1$  et  $P_2$ , l'orientation  $\langle \vec{J} \rangle$  précesse autour du champ magnétique total  $\vec{B}_0 + \vec{B}_f$  résultant du champ appliqué et du champ fictif dû à  $P_1$ . L'orientation détectée  $\langle J_z \rangle$  s'obtient donc en projetant  $\langle \vec{J} \rangle_0$  d'abord sur la direction du champ magnétique total, puis sur Oz. La valeur de  $\langle J_z \rangle$  est simple à calculer, et l'on obtient comme terme croisé à l'ordre le plus bas en  $I_1 I_2$  :

$$J_o(\vec{v}) B_f(\vec{v}) \sin\theta_1 \sin\theta_2 / \omega_o \quad (28)$$

$J_o$  et  $B_f$  sont des fonctions de la vitesse  $\vec{v}$  des atomes, respectivement proportionnelles à  $I_2$  et  $I_1$  ;  $\theta_1$  et  $\theta_2$  sont les angles que font  $P_1$  et  $P_2$  avec  $Oz$  ;  $\omega_o$  est la fréquence de Larmor du niveau  $g$  dans le champ magnétique  $\vec{B}_o$ .

Dans le cas général où le champ total est quelconque, on ne peut plus négliger la composante transversale de l'orientation. Alors, un raisonnement géométrique simple que nous ne développerons pas ici (un calcul plus général est donné dans le § suivant) montre que le même terme croisé s'écrit :

$$J_o(\vec{v}) B_f(\vec{v}) \sin\theta_1 \sin\theta_2 \omega_o (\omega_o^2 + \gamma^2)^{-1} \quad (29)$$

$\gamma$  est le taux de relaxation de l'orientation dans le niveau  $g$ .

Le signal d'orientation total détecté par le faisceau sonde, en se limitant au terme en  $I_1 I_2$ , s'obtient en sommant cette expression, pondérée par la fonction de détection, sur toutes les vitesses possibles  $\vec{v}$  des atomes, et en incluant l'effet inverse où l'orientation est créée par  $P_1$  et le champ magnétique fictif est dû à  $P_2$ .

L'étude détaillée des caractéristiques du signal obtenu (dépendance en fréquence du laser, en champ magnétique, en angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$ ), est faite dans la partie II dans le cas général, c'est-à-dire pour des polarisations quelconques des faisceaux de pompage et de détection.

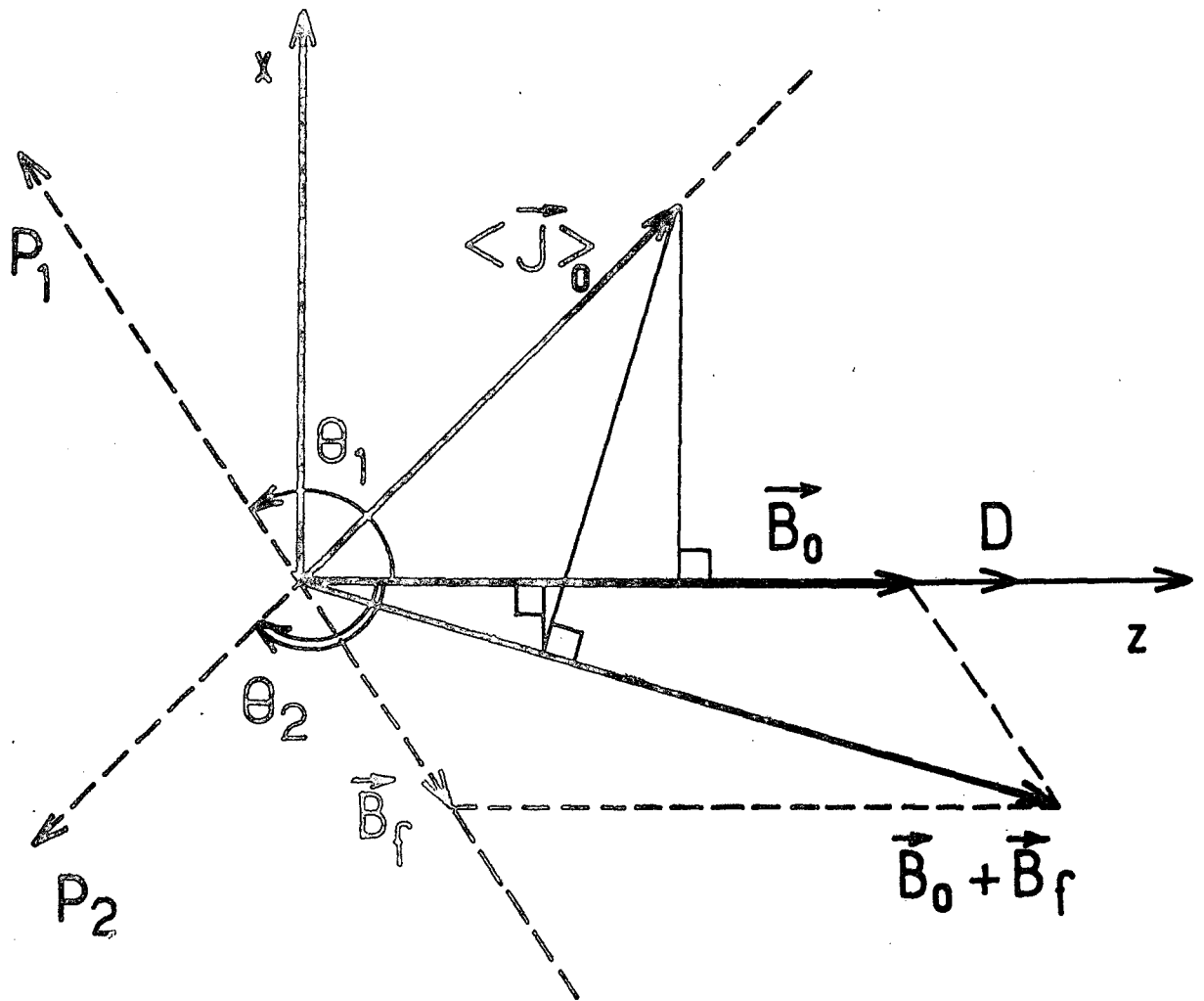


Figure 21 : Exemple simple d'effet de pompage croisé : l'orientation  $\langle \vec{J} \rangle_0$  créée par  $P_2$  précesse autour du champ total  $\vec{B}_0 + \vec{B}_f$ , où  $\vec{B}_f$  est le champ magnétique fictif associé à  $P_1$ .

## II - CALCUL GENERAL DES EFFETS DE POMPAGE OPTIQUE A DEUX FAISCEAUX

### 1) Position du problème

On se propose ici d'étudier l'évolution d'un système atomique à deux niveaux  $g$  et  $e$ , de moments cinétiques  $J_g$  et  $J_e$ , sous l'action de deux ondes incidentes de vecteurs d'onde  $\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$ , issues du même laser dont la fréquence  $\Omega_L/2\pi$  est proche de la fréquence  $\Omega_0/2\pi$  de la transition optique qui relie  $g$  et  $e$ .

On se place dans les mêmes conditions que celles qui sont présentées dans le chapitre A (§ I). Les deux ondes incidentes ont des intensités suffisamment faibles pour que les atomes évoluent en "régime de pompage". D'autre part, la largeur spectrale du laser est petite devant  $\Gamma_{eg}$  de sorte qu'on peut, dans le référentiel du laboratoire, décrire les ondes incidentes comme des ondes planes classiques de polarisations respectives  $\vec{e}_{\lambda_1}$  et  $\vec{e}_{\lambda_2}$  et d'amplitudes  $2\mathcal{E}_1$  et  $2\mathcal{E}_2$  :

$$\mathcal{E}_{1,2}(\vec{r}, t) = \vec{e}_{\lambda_{1,2}} \mathcal{E}_{1,2} \exp [i(\vec{k}_{1,2} \cdot \vec{r} - \Omega_L t)] + \text{c.c.}$$

Un atome de vitesse  $\vec{v}$  donnée dans le référentiel du laboratoire voit, dans son référentiel, deux ondes de fréquences  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$  décalées par effet Doppler :

$$\Omega_{1,2} = \Omega_L - \vec{k}_{1,2} \cdot \vec{v} \quad (30)$$

Le problème étudié se ramène donc, pour des atomes de vitesse  $\vec{v}$  donnée, à celui du calcul de l'évolution du système atomique interagissant avec deux ondes de fréquences différentes.

## 2) Equations d'évolution de l'opérateur densité

### a) Rappel : pompage optique à un faisceau

On appelle  $\sigma$  l'opérateur densité du système atomique et  $\sigma_g$  (resp.  $\sigma_e$ ) sa restriction au sous-espace associé au niveau g (resp. e).

$$\sigma_g = P_g \sigma P_g$$

$$\sigma_e = P_e \sigma P_e$$

$P_g$  et  $P_e$  sont les projecteurs sur les niveaux g et e.

Il est bien connu [3] [3b] qu'en régime de pompage, la vitesse de variation de l'opérateur densité des atomes est la somme de trois termes :

$$\frac{d\sigma}{dt} = \frac{d\sigma}{dt}\Big|_1 + \frac{d\sigma}{dt}\Big|_2 + \frac{d\sigma}{dt}\Big|_3 \quad (31)$$

Le deuxième et le troisième terme rendent compte respectivement de l'émission spontanée et de l'évolution propre du système atomique sous l'action de diverses causes autres que l'interaction avec le rayonnement (relaxation par collisions, champ magnétique appliqué etc...). Le premier terme décrit l'effet, sur le système atomique, de l'interaction avec les ondes lumineuses incidentes.

Pour une seule onde plane incidente quasi-monochromatique, de fréquence  $\Omega$  et de polarisation  $\vec{e}_\lambda$ , le premier terme s'écrit :



$$\left. \frac{d\sigma_g}{dt} \right|_1 = -\frac{\Gamma'}{2} [A, \sigma_g]_+ - i \Delta E' [A, \sigma_g] \quad \text{et} \quad (32)$$

$$\left. \frac{d\sigma_e}{dt} \right|_1 = \Gamma' (E \sigma_g)$$

L'opérateur de pompage A et l'opérateur d'excitation E associés à l'onde incidente sont définis par :

$$A = (\vec{e}_\lambda^* \cdot \vec{D}) P_e (\vec{e}_\lambda \cdot \vec{D}) \quad (33)$$

$$(E \sigma_g) = (\vec{e}_\lambda \cdot \vec{D}) \sigma_g (\vec{e}_\lambda^* \cdot \vec{D})$$

$\vec{D}$ , qui représente la partie angulaire de l'opérateur dipolaire électrique, est un opérateur tensoriel d'ordre 1 choisi de façon que  $\langle J_e || \vec{D} || J_g \rangle = 1$  ;  $\Gamma'$  et  $\Delta E'$  sont deux nombres réels proportionnels à l'intensité du faisceau incident, et ayant chacun la dimension de l'inverse d'un temps ; ils valent respectivement (\*) :

$$\begin{cases} \Gamma' = 2\omega_1^2 \frac{\Gamma_{eg}}{\Gamma_{eg}^2 + (\Omega - \Omega_0)^2} \\ \Delta E' = \omega_1^2 \frac{\Omega - \Omega_0}{\Gamma_{eg}^2 + (\Omega - \Omega_0)^2} \end{cases}$$

On a posé  $\omega_1 = \frac{|\mathcal{D}| \mathcal{E}}{h}$

avec  $\mathcal{D}^2 = |\langle J_g || \mathcal{D} || J_e \rangle|^2$

---

(\*) Le coefficient noté  $\Gamma'$  dans ce chapitre n'est autre que le taux de pompage  $\gamma_p$  du chapitre B.

Les fonctions  $\Gamma'$  et  $\Delta E'$  varient respectivement avec la fréquence de l'onde incidente comme une absorption et une dispersion de demi-largeur  $\Gamma_{eg}$ .

Dans la première équation (32), le premier terme décrit le départ des atomes de l'état métastable lors du processus d'absorption (terme de dépopulation). Le coefficient  $\Gamma'$  est à un facteur près égal à  $1/T_p$  où  $T_p$  est le temps de pompage associé au faisceau incident. L'opérateur  $A$  n'est pas scalaire et le processus d'absorption est en général anisotrope (pour une polarisation donnée  $\vec{e}_\lambda$ , les sous-niveaux Zeeman de  $g$  peuvent être dépeuplés différemment). Le deuxième terme se présente comme un terme d'évolution propre sous l'action d'un hamiltonien effectif  $\Delta E' A$  [59]. Celui-ci a pour effet de déplacer les sous-niveaux Zeeman de  $g$  d'une quantité qui dépend de la polarisation  $\vec{e}_\lambda$  et du sous-niveau Zeeman.

Les termes d'émission spontanée dans  $\frac{d\sigma}{dt}$  s'écrivent :

$$\left. \frac{d\sigma_g}{dt} \right|_2 = \mathcal{C}(\sigma_e)$$

$$\left. \frac{d\sigma_e}{dt} \right|_2 = -\Gamma \sigma_e$$

L'opérateur  $\mathcal{C}$ , qui décrit le transfert par émission spontanée du niveau  $e$  vers le niveau  $g$  est un opérateur scalaire défini dans [38] [61]. Il est proportionnel à la probabilité par unité de temps  $\Gamma_r$  de retombée par émission spontanée du niveau  $e$  vers le niveau  $g$ . Celle-ci n'est pas forcément égale à  $\Gamma$ , car le niveau  $e$  peut éventuellement se désexciter vers d'autres niveaux (soit radiativement, soit par collisions).

b) Cas de deux faisceaux

Les équations (32) sont obtenues en supposant que les cohérences optiques ont une mémoire faible [condition (2)], ce qui conduit à des équations en "régime de pompage" qui peuvent être résolues à tous les ordres en  $I$  (intensité du faisceau de pompage). Lorsqu'on a deux faisceaux de pompage, tous deux suffisamment faibles pour satisfaire cette même condition, l'idée la plus naturelle est d'écrire directement que la variation temporelle de  $\sigma$  est simplement la somme des variations imposées par chacun des faisceaux. Cette généralisation des équations (32) n'est en fait pas évidente, car la superposition des deux ondes incidentes pourrait donner lieu à des effets cohérents d'interférences qui sont ignorés dans le point de vue précédent. C'est pourquoi nous avons repris la résolution des équations générales d'évolution de l'opérateur densité  $\sigma$  dans le cas de deux faisceaux d'intensités faibles (cf. Appendice 1). On montre cependant que les termes d'interférences en  $\mathcal{E}_1$ ,  $\mathcal{E}_2$  qui apparaissent dans  $\sigma_e$  et  $\sigma_g$  calculés au deuxième ordre en champ électrique apportent au signal croisé en  $I_1$ ,  $I_2$  une contribution négligeable. Les seuls termes croisés importants sont ceux qui proviennent des termes en  $\mathcal{E}_1^2$  et  $\mathcal{E}_2^2$  dans  $\sigma_e$  et  $\sigma_g$  calculés au deuxième ordre en champ électrique : ils résultent en quelque sorte d'un premier cycle de pompage optique par un faisceau, suivi d'un deuxième cycle de pompage par l'autre.

Il est donc possible, pour calculer l'évolution des opérateurs densités  $\sigma_e$  et  $\sigma_g$ , de faire un calcul en partant des relations suivantes, où les effets des deux faisceaux ont simplement été ajoutés :

$$\frac{d\sigma_g}{dt} \Big|_1 + \frac{d\sigma_g}{dt} \Big|_2 = - \frac{\Gamma'_1}{2} [A_1, \sigma_g] + - i\Delta E'_1 [A_1, \sigma_g] + \text{idem (1}\rightarrow\text{2)} + \mathcal{C}(\sigma_e)$$

$$\frac{d\sigma_e}{dt} \Big|_1 + \frac{d\sigma_e}{dt} \Big|_2 = \Gamma'_1 (E_1 \sigma_g) + \text{idem (1}\rightarrow\text{2)} - \Gamma \sigma_e$$
(34)

idem (1→2) représente la même expression que celle qui précède où l'on a remplacé partout l'indice 1 par 2 ( $A_1$  et  $E_1$  sont les opérateurs de pompage et d'excitation associés au faisceau 1 ; la dépendance avec la fréquence  $\Omega_1$  (resp.  $\Omega_2$ ) est entièrement contenue dans  $\Gamma'_1$  et  $\Delta E'_1$  (resp.  $\Gamma'_2$  et  $\Delta E'_2$ ).

### 3) Etude du régime stationnaire

#### a) Cas simple

Pour calculer les termes de pompage croisés qui nous intéressent, qui sont du 2<sup>e</sup> ordre en intensité, il faut résoudre les équations (34) par itération jusqu'à l'ordre 2. Nous allons dans un premier temps mener ce calcul dans un cas simple, de façon à mettre en évidence les effets de pompage croisés obtenus et à dégager leur signification physique : on ignore pour le moment les effets dûs à la retombée par émission spontanée, et on suppose que le champ magnétique appliqué est nul. Le niveau g évolue donc uniquement sous l'action des deux faisceaux incidents et de la relaxation. L'évolution globale de  $^{(n)}\sigma_g$ , opérateur densité  $\sigma_g$  calculé à l'ordre n en intensité, est alors régie par l'équation :

$$\frac{d^{(n)}\sigma_g}{dt} = - \frac{\Gamma'_1}{2} [A_1, ^{(n-1)}\sigma_g] + - i\Delta E'_1 [A_1, ^{(n-1)}\sigma_g] + \text{idem (1}\rightarrow\text{2)} - \gamma ^{(n)}\sigma_g$$
(35)

Cette équation se résout simplement par itération, chaque ordre correspondant à un nombre donné de cycles de pompage optique. A l'ordre le plus bas

en intensité (ordre 0), l'opérateur densité de  $g$  est isotrope :

$${}^{(0)}\sigma_g = \frac{P_g}{2J_g + 1}$$

En reportant cette valeur dans (35), les commutateurs s'annulent, et la solution de l'équation s'écrit :

$${}^{(1)}\sigma_g = - \frac{1}{\gamma(2J_g + 1)} [\Gamma'_1 A_1 + \Gamma'_2 A_2] \quad (36)$$

A l'ordre 1 en intensité,  $\sigma_g$  est une combinaison linéaire des opérateurs de pompage  $A_1$  et  $A_2$  où n'interviennent que les "termes de dépopulation". Les effets de pompage croisé entre les deux faisceaux ne peuvent apparaître qu'à l'ordre suivant en reportant (36) dans (35). On obtient alors une équation où apparaissent des termes croisés en  $I_1 I_2$ , en plus des termes en  $I_1^2$  et  $I_2^2$ . Nous nous intéresserons ici uniquement aux termes croisés. Ils sont de deux sortes :

$$\text{soit } \frac{1}{2\gamma(2J_g + 1)} \Gamma'_1 \Gamma'_2 [A_1, A_2]_+ + \text{idem (1}\rightarrow\text{2)} \quad (37)$$

$$\text{soit } \frac{i}{\gamma(2J_g + 1)} \Delta E'_1 \Gamma'_2 [A_1, A_2] + \text{idem (1}\rightarrow\text{2)} \quad (38)$$

Ces termes croisés peuvent être appelés respectivement termes de "dépopulation-dépopulation" et termes de "dépopulation-déplacement". Dans ce cas particulier, la structure des termes de "pompage croisé" est donc particulièrement simple.

b) Cas général - Décomposition sur une base d'opérateurs tensoriels irréductibles

Si l'on tient compte de l'émission spontanée, et qu'on se place en présence d'un champ magnétique appliqué  $\vec{B}_0$ , il faut reprendre les équations (34) en ajoutant dans chacune un terme d'évolution propre :

$$\left. \frac{d^{(n)}\sigma_g}{dt} \right|_3 = -i [H_g, {}^{(n)}\sigma_g]$$

$$\left. \frac{d^{(n)}\sigma_e}{dt} \right|_3 = -i [H_e, {}^{(n)}\sigma_e]$$
(39)

Supposons que  $\vec{B}_0$  est dirigé selon Oz. Les hamiltoniens qui lui sont associés s'écrivent :

$$H_g = -\omega_g P_g J_z P_g$$
(40)

$$H_e = -\omega_e P_e J_z P_e$$

$P_g J_z P_g$  (resp.  $P_e J_z P_e$ ) est l'orientation le long de Oz dans le niveau g (resp. e).

Pour résoudre les équations d'évolution globales de  $\sigma_g$  et  $\sigma_e$  obtenues alors, il est commode de passer en représentation d'interaction par rapport au champ statique  $\vec{B}_0$  en posant :

$${}^{(n)}\tilde{\sigma}_g = e^{iH_g t} {}^{(n)}\sigma_g e^{-iH_g t}$$

$${}^{(n)}\tilde{\sigma}_e = e^{iH_e t} {}^{(n)}\sigma_e e^{-iH_e t}$$

(41)

$$\tilde{A} = e^{iH_g t} A e^{-iH_g t}$$

Les équations d'évolution globales des opérateurs densité s'écrivent :

$$\begin{aligned} \frac{d {}^{(n)}\tilde{\sigma}_g}{dt} = & -\frac{\Gamma'_1}{2} [A_1, {}^{(n-1)}\tilde{\sigma}_g] + i\Delta E'_1 [A_1, {}^{(n-1)}\tilde{\sigma}_g] + \text{idem}(1 \rightarrow 2) + e^{iH_g t} \Gamma'_1 {}^{(n)}\sigma_e e^{-iH_g t} \\ & - \gamma {}^{(n)}\tilde{\sigma}_g \end{aligned}$$

(42)

$$\frac{d {}^{(n)}\tilde{\sigma}_e}{dt} = \Gamma'_1 e^{iH_e t} (E_1 {}^{(n-1)}\sigma_g) e^{-iH_e t} + \text{idem}(1 \rightarrow 2) - \Gamma {}^{(n)}\tilde{\sigma}_e$$

On cherche, pour ces deux équations couplées, des solutions stationnaires en écrivant :

$$\frac{d {}^{(n)}\tilde{\sigma}_g}{dt} = 0 \quad \text{et} \quad \frac{d {}^{(n)}\tilde{\sigma}_e}{dt} = 0$$

On décompose chaque opérateur densité sur une base d'opérateurs tensoriels irréductibles qui se transforment simplement dans le changement de représentation utilisée. Dans le référentiel du laboratoire, les opérateurs densités  $\sigma_e$  et  $\sigma_g$  s'écrivent :

$$\begin{cases} \sigma_g = \sum_{k,q} \sigma_{g,q}^{(k)} T_q^{(k)}(J_g) \\ \sigma_e = \sum_{k,q} \sigma_{e,q}^{(k)} T_q^{(k)}(J_e) \end{cases} \quad (43)$$

$T_q^{(k)}(J)$  est l'opérateur tensoriel irréductible normé agissant à l'intérieur du niveau de moment cinétique  $J$  [62]. Son sens physique pour différentes valeurs de  $k$  et  $q$  est bien connu [63] [64] ; en particulier :

$\langle T_0^{(0)} \rangle$  est proportionnel à la population totale du niveau considéré ;

$\langle T_0^{(1)} \rangle$  est proportionnel à l'orientation  $\langle J_z \rangle$  dans ce niveau, le long de l'axe  $Oz$  ;

$\langle T_{\pm 2}^{(2)} \rangle$  et  $\langle T_{\pm 1}^{(2)} \rangle$  sont, à un facteur près, les composantes longitudinales et transversales de l'alignement dans le niveau.

Les opérateurs de pompage et d'excitation peuvent être décomposés de la même façon, en posant :

$$\begin{aligned} A_{1,2} &= \sum_{k,q} A_{1,2,q}^{(k)} T_q^{(k)}(J_g) \\ E_{1,2} &= \sum_{k,q} E_{1,2,q}^{(k)} T_q^{(k)}(J_e) \end{aligned} \quad (44)$$

L'opérateur  $E_{1,2}$  est défini par :

$$E_{1,2} = (E_{1,2} P_g)$$

Les composantes  $A_{1,2,q}^{(k)}$  et  $E_{1,2,q}^{(k)}$  dépendent des polarisations  $\vec{e}_{\lambda_1}$  et  $\vec{e}_{\lambda_2}$ .

Pour une excitation lumineuse statique, elles sont indépendantes du temps,



et en régime stationnaire les composantes  $\sigma_{gq}^{(k)}$  et  $\sigma_{eq}^{(k)}$  également.

On peut décomposer le vecteur polarisation  $\vec{e}_\lambda$  sur une base standard définie par [62] :

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{e}_{\pm 1} = \frac{(\vec{e}_x \pm i \vec{e}_y)}{\sqrt{2}} \\ \vec{e}_0 = \vec{e}_z \end{array} \right.$$

$$\vec{e}_\lambda = \sum_p (-1)^p \alpha_{-p} \vec{e}_p$$

Les coefficients  $\alpha_p$  sont les composantes standards de  $\vec{e}_\lambda$ . Le référentiel Oxyz est orthonormé et fixe par rapport au laboratoire ; l'axe Oz du champ magnétique a été choisi comme axe de quantification.

La partie angulaire  $\vec{D}$  de l'opérateur dipolaire électrique peut être décomposée de façon analogue :

$$\vec{D} = \sum_p (-1)^p D_{-p} \vec{e}_p$$

Avec ces notations, les opérateurs de pompage et d'excitation s'écrivent [63] :

$$A = \sum_{pp'} (-1)^p \alpha_p^* \alpha_{-p'} D_p P_e D_{p'}$$

$$E = \sum_{pp'} (-1)^p \alpha_p^* \alpha_{-p'} D_p P_g D_{p'}$$

On peut montrer que leurs composantes sont de la forme :

$$A_q^{(k)} = (-1)^k B_k(J_g, J_e) \phi_q^{(k)}(\vec{e}_\lambda) \quad (45)$$

$$E_q^{(k)} = B_k(J_e, J_g) \phi_q^{(k)}(\vec{e}_\lambda) \quad (46)$$

$$\text{avec } B_k(J_1, J_2) = (-1)^{J_1+J_2+k+1} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & k \\ J_1 & J_1 & J_2 \end{Bmatrix} \quad (47)$$

$$\text{et } \phi_q^{(k)}(\vec{e}_\lambda) = \sum_{pp'} (-1)^{p+1} \alpha_p^* \langle 1 \ 1 \ p \ p' | k \ q \rangle \quad (48)$$

Les coefficients  $\phi_q^{(k)}(\vec{e}_\lambda)$  sont identiques à ceux définis dans [65]. Leurs valeurs sont données dans le Tableau 3 dans le cas d'un faisceau de polarisation circulaire ou linéaire. On a supposé que le faisceau se propage dans le plan orienté  $zOx$  dans une direction qui fait l'angle algébrique  $\theta$  avec  $Oz$ .

On a d'après (41) :

$$\begin{cases} \sigma_g^{(k)} = \sum_{k,q} \sigma_{gq}^{(k)} e^{iq\omega_g t} T_q^{(k)}(J_g) \\ \sigma_e^{(k)} = \sum_{k,q} \sigma_{eq}^{(k)} e^{iq\omega_e t} T_q^{(k)}(J_e) \end{cases} \quad (49)$$

Les opérateurs A et E vérifiant des relations analogues.

TABLEAU 3

polarisations	$\phi_0^{(0)}$	$\phi_0^{(1)}$	$\phi_{\pm 1}^{(1)}$	$\phi_0^{(2)}$	$\phi_{\pm 1}^{(2)}$	$\phi_{\pm 2}^{(2)}$
$\sigma^+$	$+\frac{1}{\sqrt{3}}$	$+\frac{\cos\theta}{\sqrt{2}}$	$+\frac{\sin\theta}{2}$	$-\frac{3\sin^2\theta-2}{2\sqrt{6}}$	$-\frac{\sin\theta\cos\theta}{2}$	$+\frac{\sin^2\theta}{4}$
$\sigma^-$	$+\frac{1}{\sqrt{3}}$	$-\frac{\cos\theta}{\sqrt{2}}$	$+\frac{\sin\theta}{2}$	$-\frac{3\sin^2\theta-2}{2\sqrt{6}}$	$+\frac{\sin\theta\cos\theta}{2}$	$+\frac{\sin^2\theta}{4}$
$\uparrow$ linéaire $\parallel Oy$	$+\frac{1}{\sqrt{3}}$	0	0	$+\frac{1}{\sqrt{6}}$	0	$+\frac{1}{2}$
$\leftrightarrow$ linéaire dans le plan $zOx$	$+\frac{1}{\sqrt{3}}$	0	0	$-\frac{3\sin^2\theta-1}{\sqrt{6}}$	$+\frac{\sin\theta\cos\theta}{2}$	$-\frac{\cos^2\theta}{2}$

c) Résolution des équations par itération -

Effets de pompage croisé

A l'ordre 0 en intensité, on a toujours :

$${}^{(0)}\sigma_g = \frac{P_g}{2J_g + 1}$$

A l'ordre 1 en intensité, l'évolution de  ${}^{(1)}\nu_{\sigma_e}$  est donc régie par l'équation :

$$\frac{d^{(1)}\nu_{\sigma_e}}{dt} = \frac{\Gamma'_1}{2J_g + 1} \sum_{k_1, q_1} E_{i q_1}^{(k_1)} e^{i q_1 \omega_e t} T_{q_1}^{(k_1)}(J_e) + \text{idem (1+2)} - \Gamma^{(1)}\nu_{\sigma_e}$$

Comme  $\omega_e \ll \Gamma$  (le champ magnétique n'a pas le temps d'agir pendant la durée de vie du niveau excité), la solution de cette équation s'écrit :

$${}^{(1)}\nu_{\sigma_e} = \frac{1}{\Gamma} \frac{\Gamma'_1}{2J_g + 1} \sum_{k_1, q_1} E_{i q_1}^{(k_1)} e^{i q_1 \omega_e t} T_{q_1}^{(k_1)}(J_e) + \text{idem (1+2)} \quad (50)$$

La matrice densité  ${}^{(1)}\nu_{\sigma_g}$  du niveau métastable évolue sous l'effet de trois causes (interaction avec les faisceaux incidents, retombée par émission spontanée, et relaxation) (\*):

$$\begin{aligned} \left. \frac{d^{(1)}\nu_{\sigma_g}}{dt} \right|_1 &= - \frac{\Gamma'_1}{2J_g + 1} \sum_{k_1, q_1} A_{i q_1}^{(k_1)} e^{i q_1 \omega_g t} T_{q_1}^{(k_1)}(J_g) + \text{idem (1+2)} \\ \left. \frac{d^{(1)}\nu_{\sigma_g}}{dt} \right|_2 &= \frac{\Gamma_r}{\Gamma} \frac{\Gamma'_1}{2J_g + 1} (2J_e + 1) \sum_{k_1, q_1} (-1)^{J_e + J_g + k_1 + 1} \begin{Bmatrix} J_e & J_e & k_1 \\ J_g & J_g & 1 \end{Bmatrix} E_{i q_1}^{(k_1)} e^{i q_1 \omega_g t} T_{q_1}^{(k_1)}(J_g) \\ &+ \text{idem (1+2)} \end{aligned}$$

---

(\*) La deuxième expression peut être déduite de (50) en utilisant les résultats de M. Ducloy [61].

$$\left. \frac{d^{(1)}\nu_{\sigma_g}}{dt} \right|_3 = -\gamma^{(1)}\nu_{\sigma_g}$$

Les deux premiers termes se regroupent simplement, et l'intégration de l'équation d'évolution de  $^{(1)}\nu_{\sigma_g}$  donne :

$$^{(1)}\nu_{\sigma_g} = \frac{\Gamma'_1}{2J_g + 1} \sum_{k_1, q_1} \mathcal{B}_{k_1}(J_g, J_e) \frac{\phi_{q_1}^{(k_1)}(\vec{e}_{\lambda_1}) T_{q_1}^{(k_1)}(J_g) e^{iq_1 \omega_g t}}{iq_1 \omega_g + \gamma} + \text{idem (1+2)} \quad (51)$$

on a posé :

$$\mathcal{B}_{k_1}(J_g, J_e) = (-1)^{k_1+1} B_{k_1}(J_g, J_e) + (-1)^{J_e+J_g+k_1+1} (2J_e+1) \frac{\Gamma_r}{\Gamma} \left\{ \begin{matrix} J_e & J_e & k_1 \\ J_g & J_g & 1 \end{matrix} \right\} B_{k_1}(J_e, J_g) \quad (52)$$

Dans cette expression qui décrit l'effet d'un cycle de pompage par le faisceau 1, le premier terme correspond à la dépopulation, et le deuxième à la retombée.

A l'ordre 2 en intensité, l'équation d'évolution de  $^{(2)}\nu_{\sigma_e}$  s'écrit en utilisant l'expression (51). Nous nous contenterons ici d'écrire les termes de pompage croisés liés à l'interaction du système atomique d'abord avec un faisceau (1er cycle de pompage optique) puis avec l'autre (2e cycle) :

$$\frac{d^{(2)}\nu_{\sigma_e}}{dt} = \frac{\Gamma'_1 \Gamma'_2}{2J_g + 1} \sum_{k_1, q_1} e^{iH_e t} \frac{\mathcal{B}_{k_1}(J_g, J_e) \phi_{q_1}^{(k_1)}(\vec{e}_{\lambda_1})}{iq_1 \omega_g + \gamma} (E_2 T_{q_1}^{(k_1)}(J_g)) e^{-iH_e t} + \text{idem (1+2)} - \Gamma^{(2)}\nu_{\sigma_e}$$

L'opérateur  $(E_2 T_{q_1}^{(k_1)}(J_g))$  peut être décomposé sur la base des  $T_Q^{(K)}(J_e)$  ; ses composantes dans cette base sont données par A. Omont [63] et valent :

$$\sum_{k_2, q_2} \phi_{q_2}^{(k_2)}(\vec{e}_{\lambda_2}) \sqrt{(2k_1+1)(2k_2+1)} \left\{ \begin{matrix} J & J & 1 \\ J^e & J^g & 1 \\ K^e & k_1^g & k_2 \end{matrix} \right\} \langle k_1 k_2 q_1 q_2 | KQ \rangle$$

Les composantes de l'opérateur  $(2)_{\sigma_e}$  sont donc de la forme :

$$(2)_{\sigma_e(K)} = \frac{\Gamma_1' \Gamma_2'}{\Gamma(2J_g+1)} \sum_{\substack{k_1, k_2 \\ q_1, q_2}} \frac{B_{k_1}(J_g, J_e) \phi_{q_1}^{(k_1)}(\vec{e}_{\lambda_1}) \phi_{q_2}^{(k_2)}(\vec{e}_{\lambda_2})}{i q_1 \omega_g + \gamma} \sqrt{(2k_1+1)(2k_2+1)} \left\{ \begin{matrix} J & J & 1 \\ J^e & J^g & 1 \\ K^e & k_1^g & k_2 \end{matrix} \right\} \langle k_1 k_2 q_1 q_2 | KQ \rangle + \text{idem (1+2)} \quad (53)$$

Comme ceux de  $\frac{d^{(1)\nu}_{\sigma_g}}{dt}$ , les termes apparaissant dans  $\frac{d^{(2)\nu}_{\sigma_g}}{dt}$  sont de trois sortes ; si on se limite aux termes croisés, ceux qui décrivent l'interaction avec le faisceau lumineux contiennent soit des anticommulateurs (termes en  $\Gamma_1' \Gamma_2'$ ) soit des commutateurs (termes en  $\Gamma_1' \Delta E_2'$  et  $\Gamma_2' \Delta E_1'$ ) :

$$\begin{aligned} \frac{d^{(2)\nu}_{\sigma_g}}{dt} \Big|_1 &= - \frac{\Gamma_1' \Gamma_2'}{2(2J_g+1)} \sum_{\substack{k_1, q_1 \\ k_2, q_2}} (-1)^{k_2} B_{k_2}(J_g, J_e) B_{k_1}(J_g, J_e) \\ &\quad \frac{\phi_{q_2}^{(k_2)}(\vec{e}_{\lambda_2}) \phi_{q_1}^{(k_1)}(\vec{e}_{\lambda_1}) e^{i(q_1+q_2)\omega_g t}}{i q_1 \omega_g + \gamma} [T_{q_1}^{(k_1)}(J_g), T_{q_2}^{(k_2)}(J_g)] + \\ &\quad + \frac{i \Gamma_1' \Delta E_2'}{2J_g+1} \sum_{\substack{k_1, q_1 \\ k_2, q_2}} (-1)^{k_2} B_{k_2}(J_g, J_e) B_{k_1}(J_g, J_e) \\ &\quad \frac{\phi_{q_2}^{(k_2)}(\vec{e}_{\lambda_2}) \phi_{q_1}^{(k_1)}(\vec{e}_{\lambda_1}) e^{i(q_1+q_2)\omega_g t}}{i q_1 \omega_g + \gamma} [T_{q_1}^{(k_1)}(J_g), T_{q_2}^{(k_2)}(J_g)] + \text{idem (1+2)} \end{aligned} \quad (54)$$

Ces deux termes sont la généralisation des expressions (37) et (38) en présence d'un champ magnétique.

A partir des  $(2k_1+1)(2k_2+1)$  opérateurs  $T_{q_1}^{(k_1)}(J_g)T_{q_2}^{(k_2)}(J_g)$ , on peut construire un ensemble d'opérateurs tensoriels irréductibles  $V_Q^{(K)}(J_g)$  d'ordre  $K$  ( $|k_1-k_2| \leq K \leq k_1+k_2$ ) [66] :

$$V_Q^{(K)}(J_g) = \sum_{\substack{k_1, q_1 \\ k_2, q_2}} \langle k_1 k_2 q_1 q_2 | K Q \rangle T_{q_1}^{(k_1)}(J_g) T_{q_2}^{(k_2)}(J_g)$$

L'élément de matrice réduit de  $V^{(K)}$  s'obtient en utilisant la formule (7.1.1) de [67] :

$$\langle J_g || V^{(K)} || J_g \rangle = (-1)^{K+2J_g} \sqrt{(2k_1+1)(2k_2+1)(2K+1)} \begin{Bmatrix} k_1 & k_2 & K \\ J_g & J_g & J_g \end{Bmatrix}$$

Avec ces notations, les produits  $T_{q_1}^{(k_1)}T_{q_2}^{(k_2)}$  peuvent s'écrire :

$$T_{q_1}^{(k_1)}(J_g)T_{q_2}^{(k_2)}(J_g) = \sum_{K, Q} \langle k_1 k_2 q_1 q_2 | K Q \rangle \frac{\langle J_g || V^{(K)} || J_g \rangle}{\sqrt{2K+1}} T_Q^{(K)}(J_g)$$

où  $T_Q^{(K)}(J_g)$  est l'opérateur tensoriel irréductible normé d'ordre  $K$  agissant dans le niveau  $g$ .

On déduit simplement, des relations de symétrie des coefficients de Clebsch-Gordan, que :

$$[T_{q_1}^{(k_1)}(J_g), T_{q_2}^{(k_2)}(J_g)]_{\pm} = \sum_{K, Q} \frac{\langle J_g || V^{(K)} || J_g \rangle}{\sqrt{2K+1}} \langle k_1 k_2 q_1 q_2 | K Q \rangle [1 \pm (-1)^{k_1+k_2+K}] T_Q^{(K)}(J_g)$$

Pour être non nuls, les termes apparaissant dans (54) doivent donc vérifier :

- soit la condition  $k_1+k_2+K$  pair ; il s'agit alors de termes en  $\Gamma'_1\Gamma'_2$
- soit la condition  $k_1+k_2+K$  impair ; il s'agit alors de termes en  $\Gamma'_1\Delta E'_2$   
ou  $\Gamma'_2\Delta E'_1$ .

A ces termes, il faut ajouter ceux qui proviennent de la retombée par émission spontanée ;

$$\frac{d^{(2)}\nu_{\sigma_g}}{dt} = \frac{\Gamma_r}{\Gamma} \frac{\Gamma'_1 \Gamma'_2}{2J_g+1} (2J_e+1) \sum_{\substack{k_1, k_2 \\ q_1, q_2}} \sum_{K, Q} \frac{\mathcal{B}_{k_1}^{(J_g, J_e)} \phi_{q_1}^{(k_1)}(\vec{e}_{\lambda_1}) \phi_{q_2}^{(k_2)}(\vec{e}_{\lambda_2})}{i q_1 \omega_g + \gamma} (-1)^{J_e+J_g+K+1}$$

$$\sqrt{(2k_1+1)(2k_2+1)} \left\{ \begin{matrix} J_e & J_g & 1 \\ J_e & J_g & 1 \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} J_e & J_e & K \\ J_g & J_g & 1 \end{matrix} \right\} \langle k_1 k_2 q_1 q_2 | KQ \rangle e^{iQ\omega_g t} T_Q^{(K)}(J_g)$$

+ idem (1→2)

(55)

Le coefficient  $9j$  qui figure dans cette expression comme dans (53) est nul si  $k_1+k_2+K$  est impair : ceci est naturel, car les propriétés de symétrie de l'opérateur  $\sigma_e$  créé par un processus d'absorption sont les mêmes que celles de l'opérateur  $\sigma_g$  résultant de la dépopulation par ce processus.

Au total, les termes sources dans l'évolution de  $\nu_{\sigma_g}^{(2)}$  sont de deux sortes :

- des termes de "pompage-pompage" en  $\Gamma'_1\Gamma'_2$  où l'on a regroupé les effets dûs à la dépopulation et à la retombée ; ils correspondent à  $k_1+k_2+K$  pair.



- des termes de "pompage-déplacement" en  $\Gamma'_1 \Delta E'_2$  et  $\Gamma'_2 \Delta E'_1$  où la retombée lors du 2e cycle de pompage n'intervient pas ; ils correspondent à  $k_1+k_2+K$  impair.

En regroupant les différents termes, l'équation d'évolution de  $(2)_{\sigma_g}^{\nu}$  se résoud simplement ; dans la composante  $(2)_{\sigma_g Q}^{(K)}$  de  $(2)_{\sigma_g}$  sur la base des  $T_Q^{(K)}(J_g)$ , apparaissent deux sortes de termes croisés :

- des termes de "pompage-pompage" ( $k_1+k_2+K$  pair) :

$$\frac{\Gamma'_1 \Gamma'_2}{2J_g+1} \frac{1}{iQ\omega_g + \gamma} \sum_{\substack{k_1, q_1 \\ k_2, q_2}} \langle k_1 k_2 q_1 q_2 | KQ \rangle \frac{\phi_{q_1}^{(k_1)}(\vec{e}_{\lambda_1}) \phi_{q_2}^{(k_2)}(\vec{e}_{\lambda_2})}{i q_1 \omega_g + \gamma} \times$$

$$\left[ \mathcal{B}_{k_1}(J_g, J_e) \left( \frac{\langle J_g || V^{(K)} || J_g \rangle}{\sqrt{2K+1}} (-1)^{k_2+1} B_{k_2}(J_g, J_e) + \frac{\Gamma_r}{\Gamma} (-1)^{J_e+J_g+K+1} (2J_e+1) \right. \right.$$

$$\left. \left. \frac{\sqrt{(2k_1+1)(2k_2+1)}}{\gamma} \left\{ \begin{matrix} J_e & J_g & 1 \\ K & k_1 & k_2 \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} J_e & J_e & K \\ J_g & J_g & 1 \end{matrix} \right\} \right\} \right] + \text{idem } (1 \rightarrow 2) \quad (56)$$

- des termes de "pompage-déplacement" ( $k_1+k_2+K$  impair) :

$$-\frac{2i\Gamma'_1 \Delta E'_2}{2J_g+1} \frac{1}{iQ\omega_g + \gamma} \sum_{\substack{k_1, q_1 \\ k_2, q_2}} \langle k_1 k_2 q_1 q_2 | KQ \rangle \frac{\phi_{q_1}^{(k_1)}(\vec{e}_{\lambda_1}) \phi_{q_2}^{(k_2)}(\vec{e}_{\lambda_2})}{i q_1 \omega_g + \gamma} \times$$

$$\left[ \mathcal{B}_{k_1}(J_g, J_e) \frac{\langle J_g || V^{(K)} || J_g \rangle}{\sqrt{2K+1}} (-1)^{k_2+1} B_{k_2}(J_g, J_e) \right] + \text{idem } (1 \rightarrow 2) \quad (57)$$

Dans ces expressions, le coefficient entre crochets est un facteur numérique fonction de  $k_1$ ,  $k_2$  et  $K$ . Nous le noterons :

$\mathcal{B}_{k_1}^{(J_g, J_e)} C_p(k_1, k_2, K)$  pour les termes de pompage-pompage et  
 $\mathcal{B}_{k_1}^{(J_g, J_e)} C_d(k_1, k_2, K)$  pour les termes de pompage-déplacement.

Les expressions (56) et (57) peuvent donc s'écrire :

$$\frac{\Gamma_1' \Gamma_2'}{2J_g + 1} \sum_{k_1 k_2} \mathcal{B}_{k_1}^{(J_g, J_e)} C_p(k_1, k_2, K) \beta_Q^{(K)}$$

$$\frac{2\Gamma_1' \Delta E_1'}{2J_g + 1} \sum_{k_1 k_2} \mathcal{B}_{k_1}^{(J_g, J_e)} C_d(k_1, k_2, K) \beta_Q^{(K)}$$

avec  $\beta_Q^{(K)} = c(k_1 + k_2 + K) \sum_{q_1, q_2} \langle k_1 k_2 q_1 q_2 | K Q \rangle \frac{\phi_{q_1}^{(k_1)}(\vec{e}_{\lambda_1}) \phi_{q_2}^{(k_2)}(\vec{e}_{\lambda_2})}{(iQ\omega_g + \gamma)(iq_1\omega_g + \gamma)}$  (58)

$$c(k_1 + k_2 + K) = \begin{cases} 1 & \text{si } k_1 + k_2 + K \text{ est pair} \\ -i & \text{si } k_1 + k_2 + K \text{ est impair} \end{cases}$$

Dans les coefficients  $\beta_Q^{(K)}$  se trouve rassemblée toute la dépendance angulaire d'un effet de pompage croisé donné (c'est-à-dire associé à des valeurs de  $k_1$ ,  $k_2$ ,  $K$  et  $Q$  données).

Le signal détecté est proportionnel à une quantité que nous noterons  $s$ , combinaison linéaire de différents  $\sigma_Q^{(K)}$ , qui, dans le cas d'un faisceau sonde se propageant parallèlement à  $Oz$ , se réduit à des expressions simples :

$s = \sigma_0^{(0)}$  pour le signal d'absorption indépendant de la polarisation (en supposant nul l'alignement longitudinal)

$s = \sigma_0^{(1)}$  pour le signal de dichroïsme circulaire

$s = \sigma_2^{(2)} + \sigma_{-2}^{(2)}$  pour le signal de dichroïsme linéaire selon les axes  $Ox$  et  $Oy$

$s = \frac{\sigma_2^{(2)} - \sigma_{-2}^{(2)}}{i}$  pour le signal de dichroïsme linéaire selon les bissectrices de  $Ox$  et  $Oy$ .

Il sera commode de poser de façon analogue  $\zeta = \beta_0^{(0)}, \beta_0^{(1)}, \beta_2^{(2)} + \beta_{-2}^{(2)}$  ou  $(\beta_2^{(2)} - \beta_{-2}^{(2)})/i$ , selon la nature du signal de détection.

Supposons que chaque faisceau de pompage prenne alternativement deux états de polarisation  $\vec{e}_\lambda$  et  $\vec{e}_\mu$  (en pratique nous nous limiterons à deux situations : polarisation alternativement  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$  où seuls les  $\phi_q^{(1)}$  varient et polarisation alternativement linéaire dans le plan  $zOx$  ( $\leftrightarrow$ ) et linéaire parallèle à  $Oy$  ( $\dagger$ ) où seuls les  $\phi_q^{(2)}$  varient). Calculons alors la quantité

$$F(s) = s(\vec{e}_{\lambda_1}, \vec{e}_{\lambda_2}) + s(\vec{e}_{\mu_1}, \vec{e}_{\mu_2}) - s(\vec{e}_{\lambda_1}, \vec{e}_{\mu_2}) - s(\vec{e}_{\mu_1}, \vec{e}_{\lambda_2})$$

qui est, à un facteur près, la partie de  $s$  qui change de signe à la fois quand on change  $\vec{e}_{\lambda_1}$  en  $\vec{e}_{\mu_1}$ , et  $\vec{e}_{\lambda_2}$  en  $\vec{e}_{\mu_2}$  (partie "doublement impaire").

Il est intéressant de considérer cette quantité car c'est à elle qu'on a accès expérimentalement quand on module simultanément les polarisations des deux faisceaux de pompage (aux fréquences respectives  $\omega_1$  et  $\omega_2$ ) et qu'on sélectionne dans le signal détecté la partie modulée à la fois à  $\omega_1$  et  $\omega_2$ . Celle-ci n'est sensible qu'aux termes croisés présents dans  $^{(2)}\sigma_Q^{(K)}$  associés à des valeurs déterminées de  $k_1$  et  $k_2$ . A un facteur numérique près, qui n'est fonction que de  $k_1$ ,  $k_2$  et  $K$ , la partie doublement modulée du signal détecté est alors égale à :

$$F(\zeta) = \zeta(\vec{e}_{\lambda_1}, \vec{e}_{\lambda_2}) + \zeta(\vec{e}_{\mu_1}, \vec{e}_{\mu_2}) - \zeta(\vec{e}_{\lambda_1}, \vec{e}_{\mu_2}) - \zeta(\vec{e}_{\mu_1}, \vec{e}_{\lambda_2})$$

Les Tableaux 4 et 5 donnent les valeurs de la fonction  $F(\zeta)$  pour différents choix des polarisations  $\vec{e}_\lambda$  et  $\vec{e}_\mu$  de chacun des faisceaux de pompage et des quantités  $\zeta$  associées à la détection. Dans le Tableau 4 sont rassemblés les effets de "pompage-pompage" et dans le Tableau 5 les effets de "pompage-déplacement". Dans les deux cas, on s'est limité à l'in-

TABLEAU 4 - TERMES CROISES EN  $\Gamma_1 \Gamma_2$  (POMPAGE PAR 1 PUIS PAR 2)

Polarisations des faisceaux $\vec{e}_{\lambda_1}, \vec{e}_{\mu_1}$   $\vec{e}_{\lambda_2}, \vec{e}_{\mu_2}$	Quantité $\zeta$ sélectionnée par la détection	Valeur prise par la fonction F( $\zeta$ ) correspondante
$\sigma^+, \sigma^-$   $\sigma^+, \sigma^-$	$\beta_0^{(c)}$ $\beta_2^{(2)} + \beta_{-2}^{(2)}$ $\frac{\beta_2^{(2)} - \beta_{-2}^{(2)}}{i}$	$-\frac{2}{\sqrt{3}} \left[ \frac{\cos \theta_1 \cos \theta_2}{\gamma^2} + \frac{\sin \theta_1 \sin \theta_2}{\gamma^2 + \omega_g^2} \right]$ $2 \sin \theta_1 \sin \theta_2 \frac{\gamma^2 - 2\omega_g^2}{(\gamma^2 + \omega_g^2)(\gamma^2 + 4\omega_g^2)}$ $2 \sin \theta_1 \sin \theta_2 \frac{-3\gamma\omega_g}{(\gamma^2 + \omega_g^2)(\gamma^2 + 4\omega_g^2)}$
$\leftrightarrow, \updownarrow$   $\sigma^+, \sigma^-$	$\beta_0^{(1)}$	$-\frac{\sqrt{6}}{\sqrt{5}} \left[ \frac{\sin^2 \theta_1 \cos \theta_2}{\gamma^2} - \frac{\sin \theta_1 \cos \theta_1 \sin \theta_2}{\gamma^2 + \omega_g^2} \right]$
$\leftrightarrow, \updownarrow$   $\leftrightarrow, \updownarrow$	$\beta_0^{(c)}$ $\beta_2^{(2)} + \beta_{-2}^{(2)}$ $\frac{\beta_2^{(2)} - \beta_{-2}^{(2)}}{i}$	$\frac{1}{2\sqrt{5}} \left[ \frac{3 \sin^2 \theta_1 \sin^2 \theta_2}{\gamma^2} + \frac{4 \sin \theta_1 \cos \theta_1 \sin \theta_2 \cos \theta_2}{\gamma^2 + \omega_g^2} + \frac{(\cos^2 \theta_1 + 1)(\cos^2 \theta_2 + 1)}{\gamma^2 + 4\omega_g^2} \right]$ $\frac{\sqrt{3}}{\sqrt{7}} \left[ \frac{\sin^2 \theta_1 (\cos^2 \theta_2 + 1)}{\gamma^2 + 4\omega_g^2} - \frac{2 \sin \theta_1 \cos \theta_1 \sin \theta_2 \cos \theta_2 (\gamma^2 - 2\omega_g^2)}{(\gamma^2 + \omega_g^2)(\gamma^2 + 4\omega_g^2)} + \frac{\sin^2 \theta_2 (\cos^2 \theta_1 + 1)(\gamma^2 - 4\omega_g^2)}{(\gamma^2 + 4\omega_g^2)^2} \right]$ $-\frac{\sqrt{3}}{\sqrt{7}} \left[ \frac{\sin^2 \theta_1 (\cos^2 \theta_2 + 1) \times 2\omega_g}{\gamma(\gamma^2 + 4\omega_g^2)} - \frac{\sin \theta_1 \cos \theta_1 \sin \theta_2 \cos \theta_2 \times 6\gamma\omega_g}{(\gamma^2 + \omega_g^2)(\gamma^2 + 4\omega_g^2)} + \frac{\sin^2 \theta_2 (\cos^2 \theta_1 + 1) \times 4\gamma\omega_g}{(\gamma^2 + 4\omega_g^2)^2} \right]$

TABLEAU 5 - TERMES CROISES EN  $\Gamma_1' \Delta E_2'$  (POMPAGE PAR 1 PUIS DEPLACEMENT PAR 2)

Polarisations des faisceaux $\vec{e}_{\lambda_1}, \vec{e}_{\mu_1}$   $\vec{e}_{\lambda_2}, \vec{e}_{\mu_2}$	Quantité $\zeta$ sélectionnée par la détection	Valeur prise par la fonction $F(\zeta)$ correspondante
$\sigma^+, \sigma^-$   $\sigma^+, \sigma^-$	$\beta_0^{(1)}$	$\frac{\sqrt{2}}{\gamma} \sin \theta_1 \sin \theta_2 \frac{\omega_g}{\gamma^2 + \omega_g^2}$
$\leftrightarrow, \updownarrow$   $\sigma^+, \sigma^-$	$\beta_2^{(2)} + \beta_{-2}^{(2)}$	$\frac{2}{\sqrt{3}} \left[ \sin \theta_1 \cos \theta_1 \sin \theta_2 \frac{3\gamma\omega_g}{(\gamma^2 + \omega_g^2)(\gamma^2 + 4\omega_g^2)} \right.$ $\left. + \cos \theta_2 (\cos^2 \theta_1 + 1) \frac{4\gamma\omega_g}{(\gamma^2 + 4\omega_g^2)^2} \right]$
$\leftrightarrow, \updownarrow$   $\leftrightarrow, \updownarrow$	$\frac{\beta_2^{(2)} - \beta_{-2}^{(2)}}{i}$	$\frac{2}{\sqrt{3}} \left[ \sin \theta_1 \cos \theta_1 \sin \theta_2 \frac{\gamma^2 - 2\omega_g^2}{(\gamma^2 + \omega_g^2)(\gamma^2 + 4\omega_g^2)} \right.$ $\left. + \cos \theta_2 (\cos^2 \theta_1 + 1) \frac{\gamma^2 - 4\omega_g^2}{(\gamma^2 + 4\omega_g^2)^2} \right]$
$\leftrightarrow, \updownarrow$   $\leftrightarrow, \updownarrow$	$\beta_0^{(1)}$	$-\frac{\sqrt{2}}{\gamma\sqrt{5}} \left[ \sin \theta_1 \cos \theta_1 \sin \theta_2 \cos \theta_2 \frac{\omega_g}{\gamma^2 + \omega_g^2} \right.$ $\left. + (\cos^2 \theta_1 + 1)(\cos^2 \theta_2 + 1) \frac{\omega_g}{\gamma^2 + 4\omega_g^2} \right]$

teraction du système atomique avec le faisceau 1 puis avec le faisceau 2 : il convient donc partout d'ajouter l'effet symétrique où le système atomique interagit d'abord avec le faisceau 2 puis avec le faisceau 1 (cf. équations (56) (57)).

On peut commenter de la façon suivante deux effets prévus dans le Tableau 5 :

- Le terme de la première ligne décrit l'effet simple présenté dans la partie I.3 . Chaque faisceau de pompage, polarisé alternativement  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ , produit, par un effet de pompage, une orientation qui est modifiée par l'effet de déplacement dû à l'autre faisceau : cet effet de déplacement, dans le cas d'une polarisation circulaire, peut être décrit comme celui d'un champ magnétique fictif  $\vec{B}_f$  [59]. Il en résulte une orientation longitudinale selon Oz simultanément modulée aux deux fréquences de modulation des polarisations de pompage.

Cet effet croisé est a priori la somme de trois termes contenant les commutateurs  $[T_{-1}^{(1)}, T_{1}^{(1)}]$ ,  $[T_{1}^{(1)}, T_{-1}^{(1)}]$  et  $[T_{0}^{(1)}, T_{0}^{(1)}]$ . Le dernier étant nul, seules les composantes transversales des orientations créées par chacun des faisceaux apportent une contribution. C'est pourquoi la dépendance en angles de l'effet est en  $\sin\theta_1$ ,  $\sin\theta_2$ , et la dépendance en champ magnétique proportionnelle à :

$$i \left[ \frac{1}{\gamma + i\omega_g} - \frac{1}{\gamma - i\omega_g} \right] = \frac{2\omega_g}{\gamma^2 + \omega_g^2}$$

On retrouve donc les résultats obtenus géométriquement au § I.3 .

On peut remarquer que cet effet croisé est une fonction impaire de  $B_0$ . Ceci était prévisible par des considérations de symétrie : en effet, dans une symétrie par rapport au plan  $zOx$  des trois faisceaux, les polarisations circulaires des deux faisceaux de pompage sont changées de signe, et le terme source de l'effet croisé est inchangé ; par contre, dans cette symétrie, l'orientation résultante  $\langle J_z \rangle$  change de signe ainsi que le champ magnétique  $B_0$ .

\* Le terme de la dernière ligne est également un effet d'orientation longitudinale, résultant cette fois-ci du couplage entre les alignements créés par chacun des deux faisceaux. Un tel effet, prévu théoriquement par Lombardi [68], a déjà été mis en évidence dans des situations expérimentales où la vitesse des atomes n'est pas sélectionnée [68] [69].

Dans le cas de polarisations linéaires, soit perpendiculaires au plan  $zOx$ , soit contenues dans ce plan, le plan des faisceaux est, comme pour l'effet croisé précédent, un plan de symétrie pour l'excitation. L'orientation résultante  $\langle J_z \rangle$  est donc également une fonction impaire de  $B_0$ .

Remarque :

Les termes associés à  $\beta_0^{(0)}$  dans le Tableau 4 décrivent le "trou de population" créé par un effet de pompage croisé entre les deux faisceaux polarisés tous deux circulairement ou tous deux linéairement. En facteur de ces termes, se trouve le coefficient  $C_p(k,k,0)$ . Le calcul montre que ce dernier a la forme simple suivante :

$$C_p(k,k,0) = (-1)^{J_e + J_g + k} \sqrt{\frac{2k+1}{2J_g+1}} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & k \\ J_g & J_g & J_e \end{Bmatrix} \left(1 - \frac{\Gamma_r}{\Gamma}\right) \quad (59)$$

Dans le cas où  $\Gamma_r = \Gamma$ , c'est-à-dire où les deux niveaux e et g forment un système fermé, cette expression est nulle : il ne peut y avoir d'effet de pompage croisé sur la population du niveau g (il s'agit ici de la somme des populations des sous-niveaux Zeeman du niveau g, qu'on a supposé sans structure hyperfine).

#### 4) Calcul du signal détecté

##### a) Généralités

Nous avons calculé dans les paragraphes précédents les termes de pompage croisés à l'ordre le plus bas dans la matrice densité  $\sigma_g$  d'un atome de vitesse  $\vec{v}$  donnée. La valeur moyenne d'une observable  $\mathcal{B}$  dans ce niveau est donc une fonction de  $\vec{v}$  qui s'écrit :

$$\langle \mathcal{B} \rangle(\vec{v}) = \text{Tr} \{ \sigma_g(\vec{v}), \mathcal{B} \}$$

Elle est détectée par un faisceau sonde de polarisation donnée, de fréquence angulaire  $\Omega_L$  (les deux faisceaux pompe et le faisceau sonde sont issus du même laser monomode), et se propageant dans la direction Oz, dont on mesure l'absorption par le gaz atomique étudié. L'intensité du faisceau sonde est supposée suffisamment faible pour qu'on puisse négliger tout phénomène de pompage ou de relaxation associé à ce faisceau. D'autre part, dans notre cas où le niveau g a une durée de vie  $1/\gamma$  beaucoup plus longue que celle de la cohérence optique  $\tau_{eg}$ , on peut montrer (lorsque la largeur Doppler est beaucoup plus grande que la largeur naturelle de la transition) que les termes résultant de l'interaction cohérente de l'atome avec les faisceaux de pompage et le faisceau sonde sont



négligeables après intégration sur les vitesses des atomes (cf. Appendice 1). Le signal s'obtient donc en calculant la réponse au faisceau sonde du système atomique préalablement préparé par les deux faisceaux de pompage.

Les observables détectées par le faisceau sonde dépendent de la polarisation de celui-ci. En modulant de façon appropriée cette polarisation, on peut sélectionner une observable déterminée  $\mathcal{O}$ . Dans le cas d'un signal d'absorption<sup>(\*)</sup>, la contribution des atomes de vitesse  $\vec{v}$  s'écrit [32]:

$$S_{\vec{v}}(\Omega_L) \propto \frac{\Gamma_{eg}}{(\Omega_L - \Omega_0 - \vec{k}_d \cdot \vec{v})^2 + \Gamma_{eg}^2} \langle \mathcal{O} \rangle(\vec{v})$$

$\vec{k}_d$  est le vecteur d'onde du faisceau de détection :

$$\vec{k}_d \cdot \vec{v} = kv_z$$

$k = \Omega_L/c$  est le module du vecteur d'onde du faisceau laser.

La dépendance en vitesse de  $\langle \mathcal{O} \rangle(\vec{v})$  provient de celle de  $\sigma_g(\vec{v})$ . On s'intéresse ici uniquement au signal résultant des effets de pompage croisés à l'ordre le plus bas en intensité. Le calcul du signal fait donc intervenir les expressions (56) et (57) qui donnent les termes croisés dans  $^{(2)}\sigma_{gQ}(K)$ . Dans ces expressions la dépendance en vitesse provient uniquement des produits  $\Gamma'_1 \Gamma'_2$  et  $\Gamma'_1 \Delta E'_2$  où :

$$\Gamma'_{1,2} \propto \frac{\Gamma_{eg}}{\Gamma_{eg}^2 + (\Omega_L - \Omega_0 - \vec{k}_{1,2} \cdot \vec{v})^2} \quad \text{et}$$

---

(\*) Pour simplifier, nous nous limiterons dans ce mémoire à l'étude des signaux d'absorption. Cependant, si l'on dispose un analyseur de polarisation sur le faisceau de détection après la traversée du gaz atomique, il est possible de mesurer la dispersion optique de ce gaz ; le calcul des signaux correspondants serait très semblable à celui que nous présentons.

$$\Delta E'_{1,2} \propto \frac{\Omega_L - \Omega_0 - \vec{k}_{1,2} \cdot \vec{v}}{\Gamma_{eg}^2 + (\Omega_L - \Omega_0 - \vec{k}_{1,2} \cdot \vec{v})^2}$$

$\vec{k}_1$  et  $\vec{k}_2$  sont les vecteurs d'onde respectifs des deux faisceaux de pompage ; si  $\theta_1$  et  $\theta_2$  sont les angles algébriques que font, dans le plan  $zOx$  orienté, ces deux vecteurs avec  $Oz$ , on a :

$$\vec{k}_{1,2} \cdot \vec{v} = k(v_z \cos\theta_{1,2} + v_x \sin\theta_{1,2})$$

Le signal d'absorption associé aux atomes de vitesse  $\vec{v}$  donnée dépend donc des composantes  $v_x$  et  $v_z$  de cette vitesse par l'intermédiaire de trois facteurs : une fonction d'absorption de Lorentz liée à la détection ; deux fonctions d'absorption de Lorentz liées au pompage, s'il s'agit de termes croisés "pompage-pompage", ou l'une d'absorption et l'autre de dispersion s'il s'agit de termes croisés "pompage - déplacement".

#### b) Intégration sur les vitesses

Pour calculer le signal total détecté pour une fréquence donnée  $\Omega_L$ , il faut sommer les signaux correspondant à toutes les classes de vitesse présentes dans la cellule. Les fonctions à intégrer étant beaucoup plus étroites que la largeur Doppler résultant de la vitesse thermique des atomes, nous remplacerons dans l'intégrale la répartition des vitesses correspondante par une constante (approximation de largeur Doppler infinie). Le signal total est donc proportionnel à l'intégrale  $\int$ , sur les composantes  $v_x$  et  $v_z$  de la vitesse (la composante  $v_y$  ne joue aucun rôle), du produit des trois fonctions présentées plus haut. Nous allons calculer cette intégrale, d'abord dans le cas d'un signal de "pompage-pompage", puis dans le cas d'un signal de "pompage-déplacement".

• Signal de "pompage-pompage"

L'intégrale s'écrit :

$$\begin{aligned}
 \mathcal{J} &= \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} dv_x dv_z \Gamma_{eg}^3 \frac{1}{\Gamma_{eg}^2 + (\Omega_L - \Omega_0 - k v_z)^2} \\
 &\quad \times \frac{1}{\Gamma_{eg}^2 + [\Omega_L - \Omega_0 - k(v_z \cos \theta_1 + v_x \sin \theta_1)]^2} \\
 &\quad \times \frac{1}{\Gamma_{eg}^2 + [\Omega_L - \Omega_0 - k(v_z \cos \theta_2 + v_x \sin \theta_2)]^2}
 \end{aligned}$$

L'intégration sur  $v_x$ , qui ne fait intervenir que les deux fonctions d'absorption de Lorentz liées au pompage, n'est rien d'autre que le produit de convolution de ces deux fonctions. Le résultat de ce produit de convolution, qui se calcule simplement par transformée de Fourier, redonne une fonction d'absorption de Lorentz (\*). L'intégration sur  $v_z$ , produit de convolution de celle-ci avec la fonction d'absorption de Lorentz liée à la détection, se fait de la même manière. On obtient finalement :

$$\mathcal{J} = C \frac{1}{X^2 + L^2}$$

Les paramètres X, L et C peuvent être déduits du calcul détaillé de l'intégrale, où l'on est amené à faire plusieurs changements de variables ; ils

---


$$(*) \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{x^2 + a^2} \frac{1}{(y-x)^2 + b^2} dx = \frac{\pi}{y^2 + (|a| + |b|)^2} \frac{|a| + |b|}{|ab|}$$

valent :

$$C = \frac{\pi^2 \Gamma_{eg}}{k^4} \frac{|\sin\theta_1| + |\sin\theta_2| + |\sin(\theta_1 - \theta_2)|}{\sin^2(\theta_1 - \theta_2)}$$

$$X = \frac{\Omega_L - \Omega_o}{k} \left( 1 - \frac{\sin\theta_1 - \sin\theta_2}{\sin(\theta_1 - \theta_2)} \right)$$

$$L = \frac{\Gamma_{eg}}{k} \left( 1 + \frac{|\sin\theta_1| + |\sin\theta_2|}{|\sin(\theta_1 - \theta_2)|} \right)$$

Dans ces expressions, les valeurs absolues viennent de ce que, dans les produits de convolution de fonctions de Lorentz, les largeurs s'ajoutent en valeur absolue.

• Signal de "pompage-déplacement"

Dans ce cas l'intégrale à calculer s'écrit :

$$\begin{aligned} \mathcal{J}' &= \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} dv_x dv_z \Gamma_{eg}^2 \frac{1}{\Gamma_{eg}^2 + (\Omega_L - \Omega_o - kv_z)^2} \\ &\times \frac{1}{\Gamma_{eg}^2 + [\Omega_L - \Omega_o - k(v_z \cos\theta_1 + v_x \sin\theta_1)]^2} \\ &\times \frac{\Omega_L - \Omega_o - k(v_z \cos\theta_2 + v_x \sin\theta_2)}{\Gamma_{eg}^2 + [\Omega_L - \Omega_o - k(v_z \cos\theta_2 + v_x \sin\theta_2)]^2} \end{aligned}$$

De façon analogue à l'intégrale précédente, deux produits de convolution successifs apparaissent dans le calcul de  $J'$  ; chacun, qui concerne une fonction d'absorption et une fonction de dispersion, redonne après intégration une fonction de dispersion (\*). On obtient :

$$J' = C' \frac{X}{X^2 + L^2}$$

avec :

$$C' = \frac{\pi^2 \sin\theta_2}{k^3 |\sin\theta_2| \sin(\theta_1 - \theta_2)}$$

La variable X et la largeur L sont les mêmes que précédemment .

c) Effet du signal symétrique (1 ↔ 2)

Les signaux calculés dans le paragraphe précédent sont ceux qui résultent d'un effet de pompage croisé où le faisceau 1 agit d'abord (pompage) et le faisceau 2 ensuite (pompage ou déplacement). On doit leur ajouter les signaux résultant de l'effet croisé symétrique (action du faisceau 2 puis du faisceau 1), et qui intervient toujours simultanément dans une situation expérimentale donnée. Ces signaux se calculent de façon identique aux précédents ; il suffit simplement dans les résultats obtenus d'échanger les indices 1 et 2.

• Dans le cas d'un signal de "pompage-pompage", les deux faisceaux de pompage jouent dans le calcul exactement le même rôle, et comme on le

---

(\*) 
$$\int_{-\infty}^{+\infty} \frac{1}{x^2 + a^2} \frac{y - x}{(y - x)^2 + b^2} dx = \frac{\pi}{|a|} \frac{y}{y^2 + (|a| + |b|)^2}$$

voit dans l'expression de  $J$ , ce signal est invariant dans l'échange des indices 1 et 2. Tenir compte de l'effet symétrique revient donc uniquement à doubler le signal déjà calculé.

• Par contre, dans le cas d'un signal de "pompage-déplacement", les deux faisceaux ne jouent pas le même rôle. L'échange des indices 1 et 2, s'il laisse invariant X et L, n'est pas indifférent dans C'. Deux cas peuvent se présenter :

- ou bien  $\sin\theta_1$  et  $\sin\theta_2$  sont de signes opposés ; dans ce cas, la constante C' est la même pour les deux effets symétriques, et le signal est simplement doublé comme pour le signal de pompage-pompage.
- ou bien  $\sin\theta_1$  et  $\sin\theta_2$  sont de même signe ; C' change alors de signe par échange de 1 et 2 et les signaux résultants des deux effets symétriques s'annulent exactement.

En conséquence, les signaux de "pompage-déplacement" ne sont visibles que dans certaines conditions géométriques : si l'on choisit par définition  $\theta_1$  et  $\theta_2$  tels que  $|\theta_1|$  et  $|\theta_2| < \pi$ , on doit avoir  $\theta_1$  et  $\theta_2$  de signes opposés, c'est-à-dire que les deux faisceaux de pompage (orientés par leurs directions de propagation) doivent être situés dans le plan  $zOx$  de part et d'autre du faisceau sonde.

d) Etude de la largeur en fréquence des signaux

Les valeurs de X et L étant identiques, les signaux en absorption ou en dispersion (quand ils existent) ont la même largeur en fréquence. Celle-ci vaut :

$$\mathcal{L} = 2 \Gamma_{eg} \frac{1 + \frac{|\sin\theta_1| + |\sin\theta_2|}{|\sin(\theta_1 - \theta_2)|}}{\left| 1 - \frac{\sin\theta_1 - \sin\theta_2}{\sin(\theta_1 - \theta_2)} \right|} \quad (60)$$

Cette expression se simplifie considérablement si l'on fait des hypothèses concernant les signes respectifs de  $\sin\theta_1$ ,  $\sin\theta_2$  et  $\sin(\theta_1 - \theta_2)$ . Nous utiliserons les quatre relations suivantes :

$$\sin(\theta_1 - \theta_2) - (\sin\theta_1 - \sin\theta_2) = 4 \frac{\sin\frac{\theta_1}{2} \sin\frac{\theta_2}{2} (\sin\frac{\theta_1}{2} \cos\frac{\theta_2}{2} - \sin\frac{\theta_2}{2} \cos\frac{\theta_1}{2})}{2 \cdot 2}$$

$$\sin(\theta_1 - \theta_2) + (\sin\theta_1 - \sin\theta_2) = 4 \cos\frac{\theta_1}{2} \cos\frac{\theta_2}{2} (\sin\frac{\theta_1}{2} \cos\frac{\theta_2}{2} - \sin\frac{\theta_2}{2} \cos\frac{\theta_1}{2})$$

$$\sin(\theta_1 - \theta_2) + (\sin\theta_1 + \sin\theta_2) = 4 \sin\frac{\theta_1}{2} \cos\frac{\theta_2}{2} (\sin\frac{\theta_1}{2} \sin\frac{\theta_2}{2} + \cos\frac{\theta_1}{2} \cos\frac{\theta_2}{2})$$

$$\sin(\theta_1 - \theta_2) - (\sin\theta_1 + \sin\theta_2) = -4 \sin\frac{\theta_2}{2} \cos\frac{\theta_1}{2} (\sin\frac{\theta_1}{2} \sin\frac{\theta_2}{2} + \cos\frac{\theta_1}{2} \cos\frac{\theta_2}{2})$$

Rappelons qu'on a choisi par hypothèse :

$$-\pi < \theta_1 < +\pi \quad \text{et} \quad -\pi < \theta_2 < +\pi$$

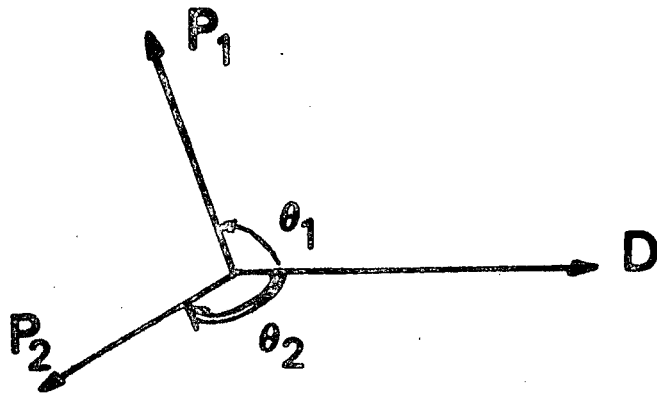
Différents cas peuvent se présenter, qui sont schématisés sur la Figure 22:

- Cas 1  $\theta_1$  et  $\theta_2$  sont de signes opposés et tels que  $|\theta_1 - \theta_2| > \pi$  ;

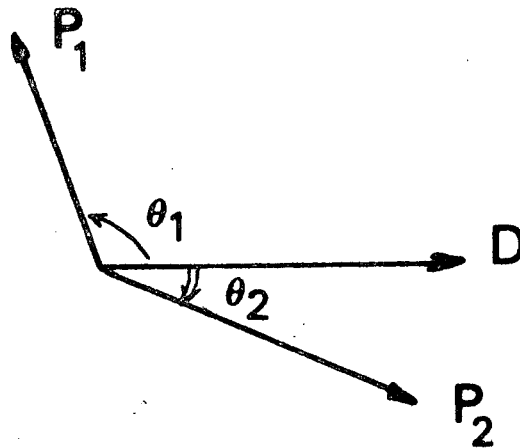
$$\text{on a donc} \quad \left\{ \begin{array}{l} \theta_1 > 0 \\ \theta_2 < 0 \\ \sin(\theta_1 - \theta_2) < 0 \end{array} \right. \quad \text{ou bien} \quad \left\{ \begin{array}{l} \theta_1 < 0 \\ \theta_2 > 0 \\ \sin(\theta_1 - \theta_2) > 0 \end{array} \right.$$

Dans ce cas, la largeur du signal est simplement :

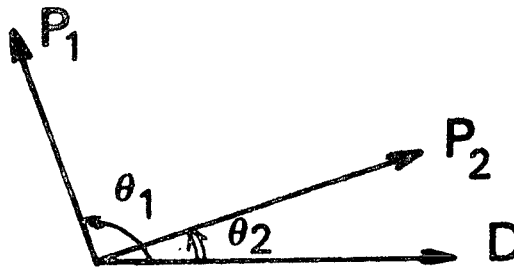
$$\mathcal{L}_1 = 2 \Gamma_{eg}$$



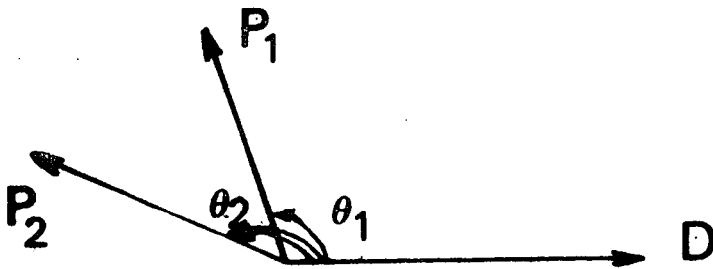
**cas 1**  
.....



**cas 2**  
.....



**cas 3**  
.....



**cas 4**  
.....

Figure 22 : Différents cas possibles de disposition respective des faisceaux de pompage entre eux et par rapport au faisceau sonde D.



Elle est égale à la largeur naturelle de la transition considérée, comme dans le cas d'une expérience de pompage optique sélectif en vitesses à un faisceau.

• Cas 2  $\theta_1$  et  $\theta_2$  sont de signes opposés, et tels que  $|\theta_1 - \theta_2| < \pi$  ;

on a donc :

$$\left\{ \begin{array}{l} \theta_1 > 0 \\ \theta_2 < 0 \\ \sin(\theta_1 - \theta_2) > 0 \end{array} \right. \quad \text{ou bien} \quad \left\{ \begin{array}{l} \theta_1 < 0 \\ \theta_2 > 0 \\ \sin(\theta_1 - \theta_2) < 0 \end{array} \right.$$

Dans ce cas, la largeur du signal s'écrit, après transformation :

$$\mathcal{L}_2 = 2 \Gamma_{eg} \left| \cotg \frac{\theta_1}{2} \cotg \frac{\theta_2}{2} \right|$$

Cette largeur, qui est toujours plus grande que la largeur naturelle, tend vers celle-ci quand  $|\theta_1 - \theta_2|$  tend vers  $\pi$  (faisceaux de pompage se propageant en sens opposés). Si  $\theta_1$  ou  $\theta_2$  est nul (un des faisceaux de pompage se propage dans le même sens que la sonde),  $\mathcal{L}_2$  devient infinie (en fait, on aurait obtenu la largeur Doppler si on ne l'avait pas supposée infinie).

• Cas 3  $\theta_1$  et  $\theta_2$  sont de même signe, et tels que  $|\theta_1| > |\theta_2|$  ; on a

donc :

$$\left\{ \begin{array}{l} \theta_1 > 0 \\ \theta_2 > 0 \\ \sin(\theta_1 - \theta_2) > 0 \end{array} \right. \quad \text{ou bien} \quad \left\{ \begin{array}{l} \theta_1 < 0 \\ \theta_2 < 0 \\ \sin(\theta_1 - \theta_2) < 0 \end{array} \right.$$

Dans ce cas, la largeur du signal devient :

$$\mathcal{L}_3 = 2 \Gamma_{eg} \cotg \frac{\theta_2}{2} \cotg \left( \frac{\theta_1 - \theta_2}{2} \right)$$

• Cas 4  $\theta_1$  et  $\theta_2$  sont de même signe, et tels que  $|\theta_1| < |\theta_2|$  ; on a

$$\text{donc : } \left\{ \begin{array}{l} \theta_1 > 0 \\ \theta_2 > 0 \\ \sin(\theta_1 - \theta_2) < 0 \end{array} \right. \quad \text{ou bien} \quad \left\{ \begin{array}{l} \theta_1 < 0 \\ \theta_2 < 0 \\ \sin(\theta_1 - \theta_2) > 0 \end{array} \right.$$

La largeur du signal vaut alors :

$$\mathcal{L}_4 = 2 \Gamma_{eg} \cotg \frac{\theta_1}{2} \cotg \left( \frac{\theta_2 - \theta_1}{2} \right)$$

Les cas 3 et 4, qui ne diffèrent que par la numérotation des faisceaux de pompage, sont identiques physiquement. Dans les deux cas, la largeur trouvée est plus grande que la largeur naturelle et devient très grande, c'est-à-dire égale à la largeur Doppler, quand un faisceau est parallèle à la sonde, ou quand les deux faisceaux de pompage sont parallèles entre eux.

En résumé, la situation où le signal est le plus étroit est celle où les deux faisceaux de pompage sont de part et d'autre de la sonde et où, dans l'espace des vitesses, la zone doublement pompée va à la rencontre de la zone détectée lorsque la fréquence du laser varie (situation de la Fig. 20). La largeur du signal est alors la largeur naturelle de la transition considérée (\*). Dans cette situation, les deux types de signaux ("pompage-pompage" et "pompage-déplacement") peuvent être détectés.

---

(\*) La théorie développée ici est limitée au 1er ordre par rapport à l'intensité de chacun des faisceaux. Des effets de saturation et d'élargissement apparaîtraient bien sûr aux ordres supérieurs.

### III - EXPERIENCES

#### 1) Dispositif expérimental

Nous avons réalisé une expérience de pompage optique à deux faisceaux, doublement sélectif en vitesses, sur le niveau métastable  $^3P_2$  du néon. La cellule contenant les atomes de néon est illuminée par deux faisceaux de pompage étendus, issus du même laser monomode : leur intersection détermine dans la cellule une zone doublement pompée d'environ  $10\text{ cm}^3$ , qui est traversée par un faisceau sonde non étendu issu du même laser. Les polarisations des trois faisceaux sont modulées à des fréquences différentes de façon que la détection puisse sélectionner un effet croisé déterminé (cf. § II.3.c).

Comme la plupart des expériences décrites dans le chapitre B, nous avons utilisé la transition, de longueur d'onde  $\lambda = 6402\text{ \AA}$ , qui relie le niveau métastable  $^3P_2$  au niveau  $2p_9$  de la configuration  $2p^5 3p$ .

La cellule et le laser ont été décrits dans le chapitre A. Seuls le montage optique et l'électronique de détection diffèrent par rapport au dispositif utilisé dans le cas d'un faisceau de pompage unique.

a) Le montage optique

Le faisceau lumineux issu du laser est séparé en trois parties : les deux premières, d'intensités comparables, sont utilisées pour le double pompage optique ; la troisième, beaucoup moins intense, sert à la détection. La disposition générale des trois faisceaux est schématisée sur la Figure 23. Chaque faisceau traverse un cristal électrooptique (noté  $C_1$ ,  $C_2$  ou  $C$ ) qui module sa polarisation en créneaux, soit alternativement  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ , soit alternativement linéaire dans le plan  $zOx$  des faisceaux et linéaire perpendiculairement à ce plan. Les fréquences de modulation seront notées respectivement  $\omega_1$  et  $\omega_2$  pour les faisceaux de pompage, et  $\omega$  pour le faisceau de détection. Le diamètre de chaque faisceau de pompage est multiplié par 10 par un jeu de deux lentilles.

Des contraintes géométriques liées aux bobines de champ magnétique nous ont amenés à choisir une géométrie où les deux faisceaux de pompage sont, dans la cellule, symétriques par rapport à l'axe  $Oz$  commun à la détection et au champ magnétique : les angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$  valent respectivement  $+135^\circ$  et  $-135^\circ$ . Rappelons que, dans cette situation, la théorie prévoit que des signaux de "pompage-déplacement" peuvent être détectés, et que la largeur en fréquence des signaux est minimale (cf § II.4).

Une lame séparatrice prélève une partie du faisceau sonde avant sa traversée de la cellule et l'envoie sur un photomultiplicateur ( $PM_2$ ). Les signaux délivrés par les photomultiplicateurs  $PM_1$  et  $PM_2$  sont donc proportionnels à l'intensité du faisceau sonde avant et après la cellule. Ils sont utilisés pour une méthode de détection différentielle, déjà présentée dans le chapitre B et qui permet d'éliminer presque totalement le bruit dû aux fluctuations d'intensité du laser.

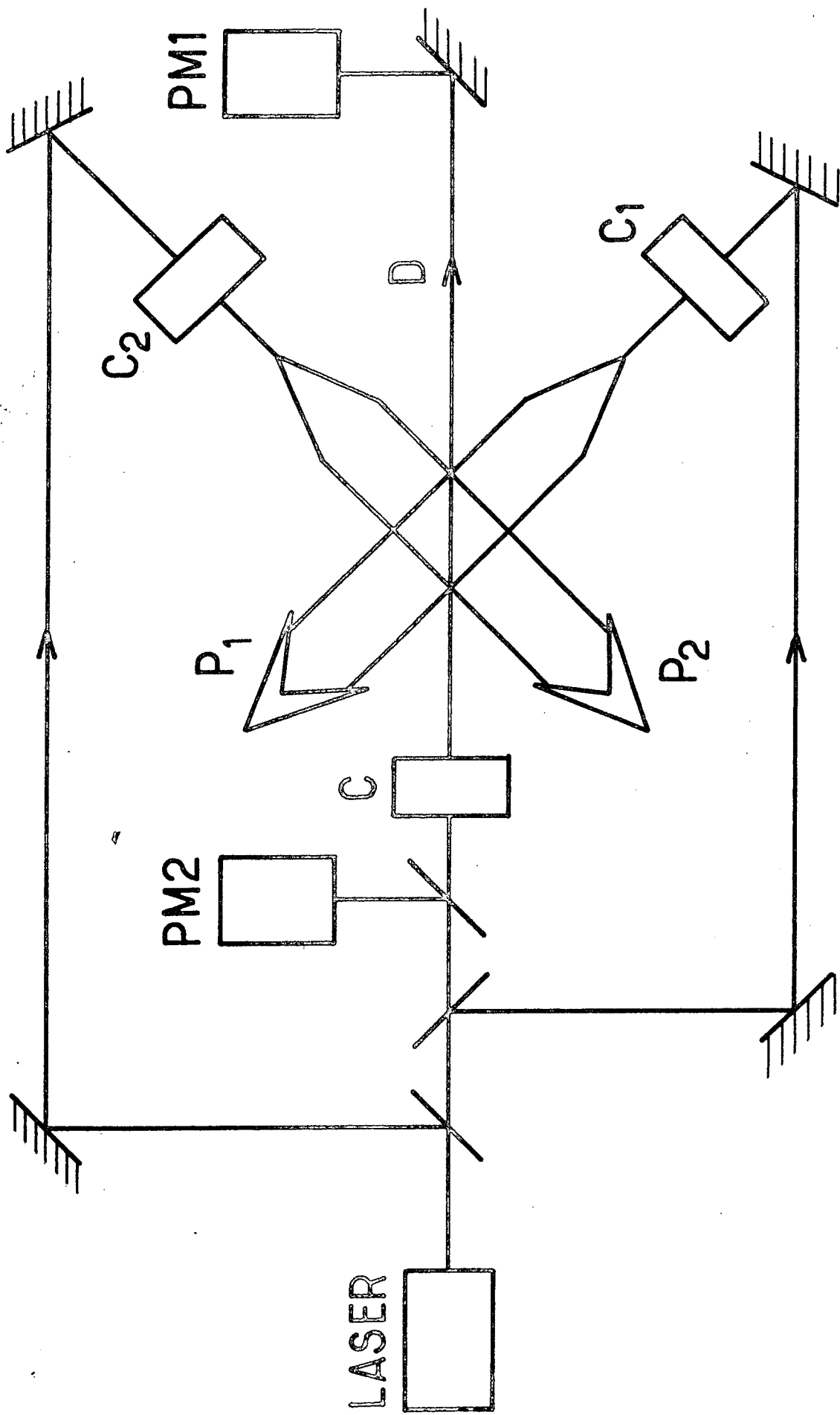


Figure 23 : Schéma du dispositif expérimental utilisé dans les expériences de pompage optique doublement sélectif en vitesses.

b) L'électronique de détection

Elle doit permettre de sélectionner dans le signal d'absorption délivré par le PMI, la composante du signal modulée à la fois aux trois fréquences  $\omega$ ,  $\omega_1$  et  $\omega_2$  de façon à isoler le signal de pompage croisé associé à une observable déterminée. Plutôt que de chercher un signal à une fréquence de la forme  $\omega \pm \omega_1 \pm \omega_2$ , c'est-à-dire sur l'une des "bandes latérales" de l'excitation et de la détection, il nous a paru préférable, pour ne pas perdre une partie du signal, d'utiliser trois détecteurs synchrones "en cascade" (le signal de sortie de l'une sert de signal d'entrée pour la suivante) démodulant le signal respectivement aux fréquences  $\omega$ ,  $\omega_1$  et  $\omega_2$ . Les détecteurs synchrones sont deux PAR 124 et une PAR HR8. Elles démodulent le signal par ordre de fréquences décroissantes, et ces fréquences sont choisies suffisamment différentes pour que toutes les fréquences de modulation du signal d'entrée de chacune restent dans la bande passante de l'amplificateur sélectif correspondant ( $\omega = 18$  kHz,  $\omega_1 = 1$  kHz et  $\omega_2 = 80$  Hz). Une constante de temps minimale est appliquée à la sortie des deux premières, pour qu'elles laissent passer au mieux le signal cherché.

Le signal de sortie de la troisième détection synchrone est envoyé sur la voie Y de l'enregistreur dont la voie X est alimentée par un signal proportionnel à la pression dans le Fabry-Pérot, donc à la fréquence du laser.

Pour nous affranchir du bruit d'intensité du laser, nous avons utilisé comme signal d'entrée de la première détection synchrone, non pas le signal délivré par PM1 seul, mais la différence (obtenue par un amplificateur différentiel) des signaux délivrés par PM1 et PM2. Pour que cette méthode soit la plus efficace possible, il faut que les gains des deux photomultiplicateurs soient constamment ajustés de façon que ces deux signaux aient des niveaux continus égaux. Comme l'intensité du faisceau sonde, après traversée de la cellule, varie quand on balaie le profil d'absorption de la raie, il a été utile d'asservir la haute tension d'alimentation du PM2 de façon que l'égalité des deux signaux continus soit toujours assurée.

## 2) Résultats

### a) Généralités

Nous avons observé avec ce dispositif expérimental, différents signaux, correspondant soit à un effet de pompage croisé du type "pompage-pompage" (signal variant en absorption avec la fréquence du laser), soit à un effet du type "pompage-déplacement" (signal variant en dispersion avec la fréquence du laser). Le plus grand signal que nous ayons obtenu est de cette deuxième sorte. Il s'agit de l'effet déjà présenté en I.3.c où les polarisations des trois faisceaux sont circulaires, alternativement droites et gauches.

Ce signal a pour amplitude environ  $10^{-4}$  de la tension totale délivrée par PM1, le taux maximal d'absorption par le gaz étant de l'ordre de 15 %. Cette valeur doit être comparée à celle qu'on obtient dans une expérience de pompage optique sélectif en vitesses avec un seul faisceau, pour une même intensité de pompage et avec une cellule identique ; l'ampli-

tude du signal est alors 5 % de la tension totale (taux d'orientation 30 %).

Le facteur 500 perdu en passant d'une expérience à l'autre est dû à plusieurs causes :

- Dans l'expérience à deux faisceaux, on sélectionne deux composantes de la vitesse des atomes au lieu d'une seule : on perd ainsi un facteur 50 à 100 sur le nombre d'atomes participant au signal (en l'absence de "jitter" du laser, ce facteur est théoriquement le rapport de la largeur Doppler à la largeur de la transition).
- On perd également un facteur géométrique dû au fait que le trajet du faisceau sonde dans la région de la cellule où les atomes peuvent être doublement pompés est nettement plus court que dans le cas d'un seul faisceau de pompage où on utilise une géométrie colinéaire.
- Enfin, le deuxième faisceau de pompage ne peut modifier que partiellement les observables créées par le premier.

Le rapport signal sur bruit obtenu pour ce signal que nous appellerons "signal principal" parce qu'il est le plus grand, est de l'ordre de 30.

#### b) Etude du signal principal

La Figure 24 montre le signal d'orientation obtenu, par couplage de deux orientations (effet de "pompage-déplacement"), quand on balaie la fréquence du laser. Deux courbes de dispersion sont visibles, d'importance inégales : elles correspondent au même signal pour le  $^{20}\text{Ne}$  et le  $^{22}\text{Ne}$ . Elles sont très nettement séparées, ce qui ne serait pas le cas en présence d'un élargissement Doppler des raies.



Une analyse du profil du signal montre que, bien qu'il s'agisse d'une courbe impaire avec  $\delta = \Omega_L - \Omega_0$ , ce n'est pas une courbe de dispersion de Lorentz : les ailes de la courbe sont trop importantes par rapport aux extrema. Ce fait peut être expliqué par l'existence dans la cellule de collisions qui changent la vitesse des atomes tout en conservant partiellement leur orientation. On sait en effet que de telles collisions peuvent jouer un rôle dans ces conditions expérimentales. Leur influence sur les signaux de pompage optique croisé est discutée dans l'Appendice 2. On y montre que le profil en fréquence des signaux est élargi mais garde la même parité par rapport à  $\Omega_L - \Omega_0$ , ce qui est en accord avec l'expérience.

On peut définir la largeur du signal comme la distance en fréquence entre le maximum et le minimum de la courbe. Dans des conditions où le signal est désaturé au maximum en atténuant les faisceaux de pompage, nous avons constaté que cette largeur varie avec le champ magnétique longitudinal : elle est environ de 40 MHz en champ faible tandis qu'elle n'est que de 25 MHz dans un champ de 100 mG ou plus. Ce phénomène peut lui aussi être expliqué par la présence de collisions, qui tendent à élargir les courbes expérimentales, mais dont on peut montrer (cf Appendice 2) que l'effet est réduit par un champ magnétique.

Cette dernière valeur est à comparer à celle qu'on obtient dans une expérience de pompage optique sélectif en vitesses avec un seul faisceau et dans des conditions identiques, qui est de 18 MHz environ (rappelons que dans les deux cas la largeur théorique est la largeur na-

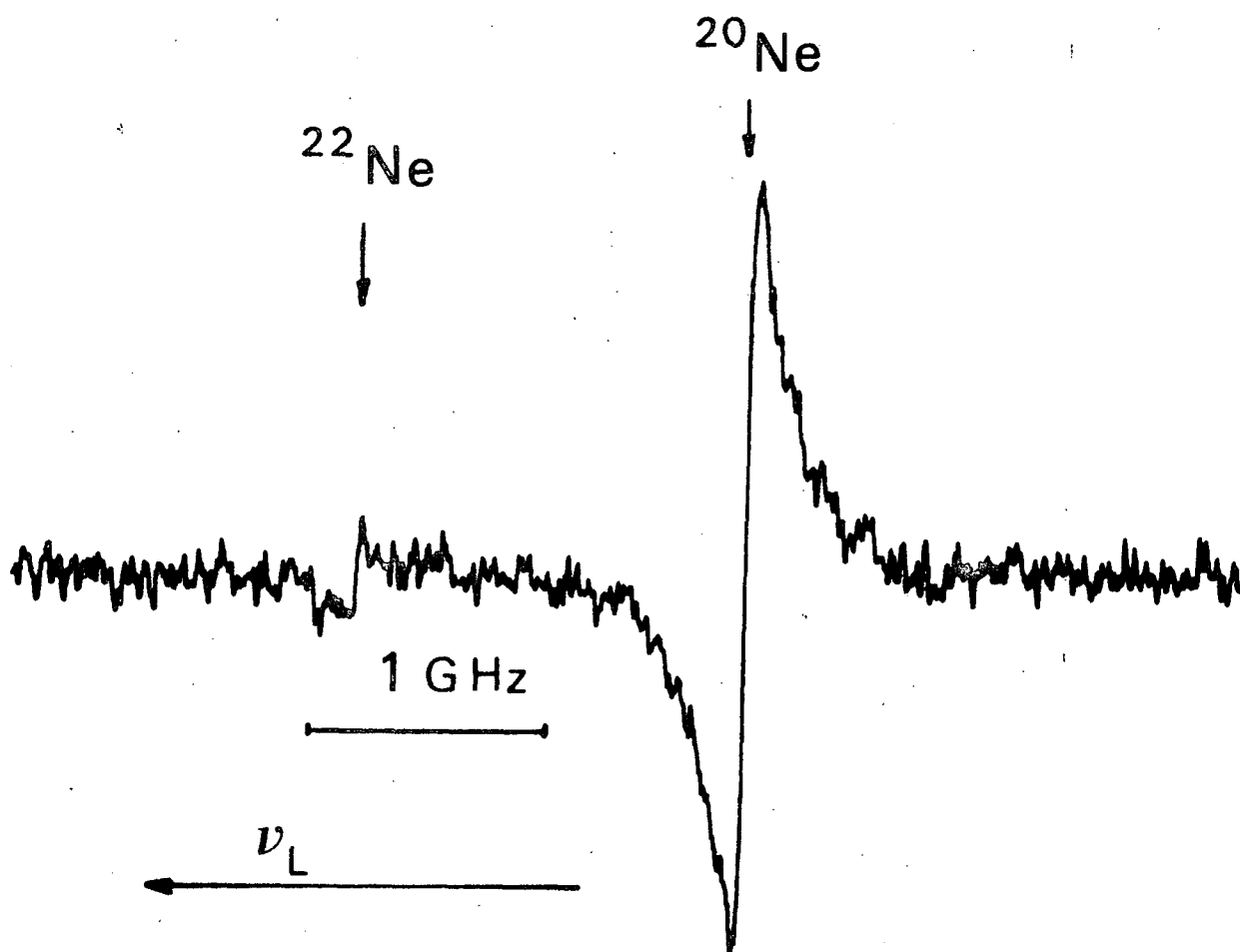


Figure 24 : Signal "principal" (orientation résultant du couplage de deux orientations) obtenu quand on balaie la fréquence du laser ; l'amplitude du signal correspond à une modification d'environ  $10^{-4}$  de l'intensité du faisceau sonde.

turelle, d'environ 8 MHz). Dans les deux expériences, l'écart entre la valeur expérimentale et la valeur théorique peut être dû à plusieurs causes : le "jitter" du laser,

la colinéarité ou la coplanarité imparfaite des faisceaux entre eux, le parallélisme imparfait de l'un ou de l'autre des faisceaux.

Nous avons étudié également l'amplitude du signal en fonction de celle du champ magnétique longitudinal. La variation correspondante est reportée sur la Figure 25. De même que pour le profil en fréquence, la courbe obtenue est impaire avec  $B_0$ , comme prévu théoriquement. Il ne s'agit cependant pas d'une véritable courbe de dispersion de Lorentz : les ailes de la courbe sont trop importantes. Ceci n'est pas explicable par l'effet des collisions (\*). Différentes explications peuvent être proposées : taux de relaxation  $\gamma$  des atomes métastables dépendant de la vitesse, faible champ magnétique transverse (l'expérience montre en effet qu'un champ magnétique transverse appliqué de quelques mG suffit pour élargir la courbe considérée de façon notable).

Malgré ces difficultés, une valeur approximative du taux de relaxation moyen des atomes de vitesse nulle dans le plan  $zOx$  peut être déduite de la largeur de la courbe expérimentale obtenue en fonction de  $B_0$ . En désaturant au mieux le signal, nous avons trouvé une demi-largeur de  $(25 \pm 5)$  mG, ce qui correspond à  $\gamma = (310 \pm 30) 10^3 \text{ rad.s}^{-1}$ . Cette valeur

---

(\*) Comme montré dans l'Appendice 2, les collisions jouent un rôle plus important en champ faible, et devraient donc nous amener à surestimer le signal en champ faible, sans modifier le signal en champ fort.

est à comparer à celle que nous avons obtenue dans le chapitre B avec la même cellule pour les atomes dont seule une composante de la vitesse est nulle :  $\gamma = (315 \pm 25) 10^3 \text{ rad.s}^{-1}$ . Comme prévu, l'ordre de grandeur de ces deux taux de relaxation est le même. Remarquons cependant qu'il n'y a pas de raison de principe pour qu'ils soient strictement égaux étant donné qu'on sélectionne dans un cas une seule composante de la vitesse et dans l'autre cas deux composantes. Par exemple, si l'on admet que la section efficace de collision est la même, le taux de collision d'un atome sondé varie comme la vitesse relative moyenne de cet atome avec les autres atomes du gaz. Cette vitesse est plus faible d'approximativement 10 % quand deux composantes de la vitesse sont nulles au lieu d'une.

### c) Autres signaux observés

Nous avons observé d'autres signaux mais sans pouvoir en mener une étude aussi détaillée, en raison du rapport signal sur bruit obtenu qui est nettement plus petit que celui du signal principal.

• La Figure 26a montre le signal d'orientation prévu par Lombardi [68] (cf. II.3.c), et qui résulte du couplage de deux alignements par un effet de "pompage-déplacement". Nous avons utilisé des polarisations linéaires fixes pour le pompage (perpendiculaire l'une à l'autre dans le cas de la figure), et modulé à 100 % les intensités des deux faisceaux (\*).

---

(\*) L'avantage de cette méthode est d'éviter que, par un léger dérèglement de la biréfringence des cristaux électrooptiques, chaque faisceau de pompage ne crée une petite orientation modulée.

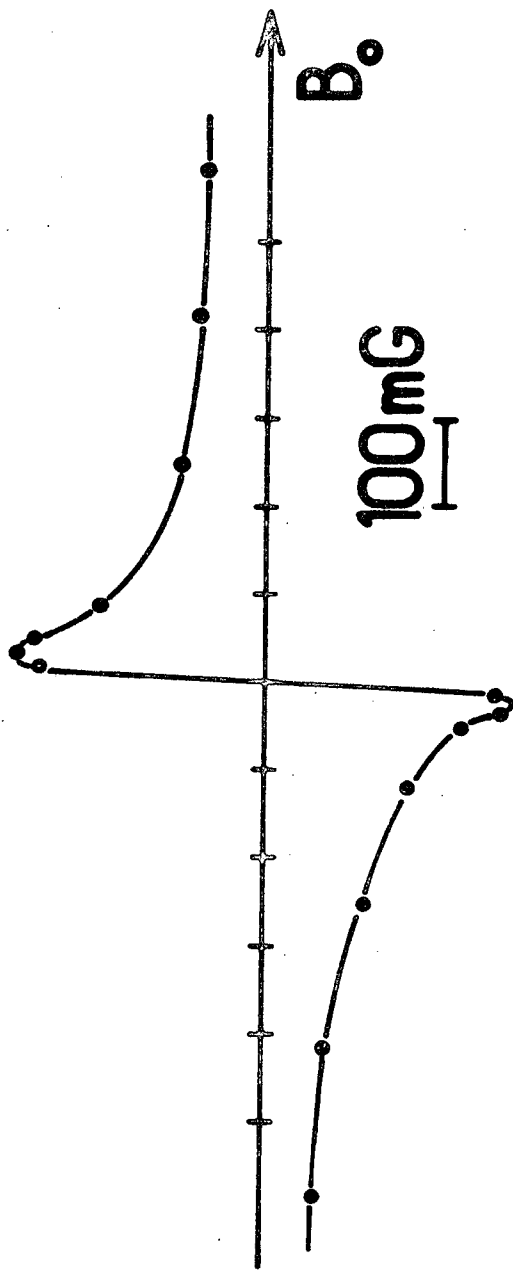


Figure 25 : Variation de l'amplitude du signal principal avec le champ magnétique longitudinal  $B_0$ .

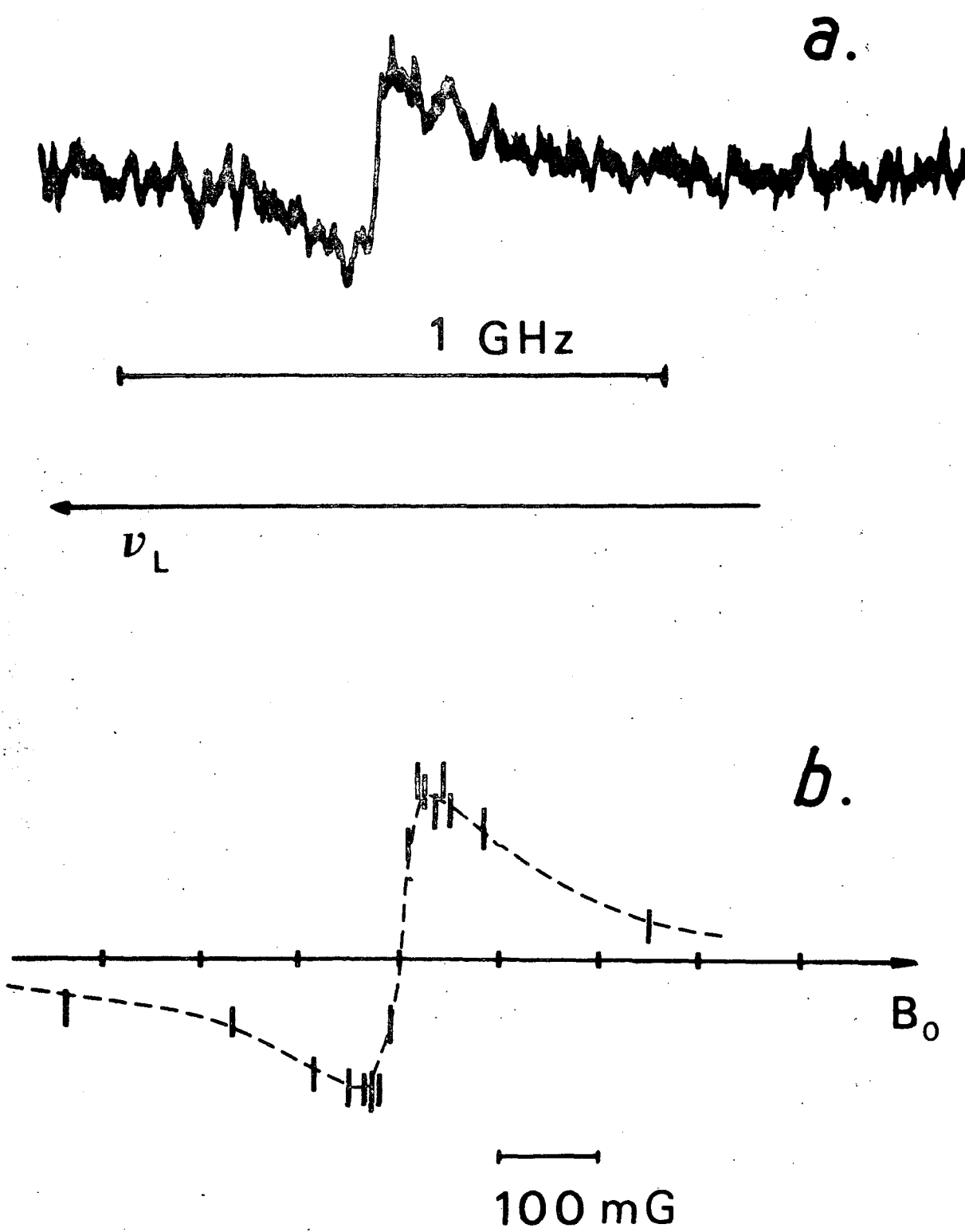


Figure 26 : a. Signal d'orientation résultant du couplage de deux alignements ;  
 b. Variation de l'amplitude du signal précédent avec  $B_0$ .

Les modulations de population parasites ainsi créées ne peuvent pas donner lieu à un effet d'orientation. La sonde a une intensité constante et sa polarisation est modulée alternativement  $\sigma^+$  et  $\sigma^-$ . L'amplitude du petit signal obtenu est d'environ  $2 \cdot 10^{-5}$  de l'intensité du faisceau sonde. Le signal a, comme prévu théoriquement, un profil en dispersion.

Nous avons étudié les variations de l'amplitude de ce signal avec le champ magnétique  $B_0$ . Les points obtenus sont portés sur la Figure 26b. Ces variations ont l'allure prévue théoriquement, tout en ayant encore des ailes plus larges que celles d'une courbe de dispersion de Lorentz. Cependant, pour étudier cet effet, il ne nous a pas été possible d'atténuer les faisceaux de pompage de façon à désaturer le signal. Des effets d'ordres supérieurs sont certainement superposés ici à l'effet croisé proportionnel à  $I_1 I_2$ .

• Les autres signaux que nous avons observés sont des signaux de "pompage-pompage", ayant donc un profil d'absorption avec la fréquence du laser. Nous nous contenterons ici de les citer, n'ayant pas pu en mener une étude détaillée.

- signal d'orientation résultant du couplage entre une orientation et un trou de population (effet en  $[T_0^{(1)}, T_0^{(0)}]_+$  qui est indépendant du champ magnétique); la Figure 27 donne un exemple d'un tel signal.

- signal d'orientation résultant du couplage entre une orientation et un alignement (effet en  $[T_1^{(1)}, T_{-1}^{(2)}]_+$  et  $[T_{-1}^{(1)}, T_1^{(2)}]_+$  dont la variation en champ magnétique est paire).

- signal d'alignement résultant du couplage entre deux orientations (effet en  $[T_1^{(1)}, T_{-1}^{(1)}]_+$  dont la variation en champ magnétique est paire).

## CONCLUSION DU CHAPITRE C

Dans cette expérience, l'excitation par deux faisceaux non colinéaires permet de sélectionner des atomes ayant deux composantes de leur vitesse déterminées. L'utilisation d'effets de pompage optique croisé permet d'observer une grande variété de signaux.

La généralisation de cette méthode à trois faisceaux de pompage non coplanaires serait possible à condition d'améliorer le rapport signal sur bruit que nous avons obtenu (30 au maximum). Un effet de saturation croisé permettrait alors de sélectionner dans la cellule les atomes quasi-immobiles (suppression des élargissements de raie introduits par la distorsion des fronts d'onde). Enfin, de nouvelles études de collisions pourraient être menées par ce type de méthode qui sélectionne plusieurs composantes de la vitesse des atomes : elles donneraient accès plus en détail aux différentes caractéristiques physiques des collisions.



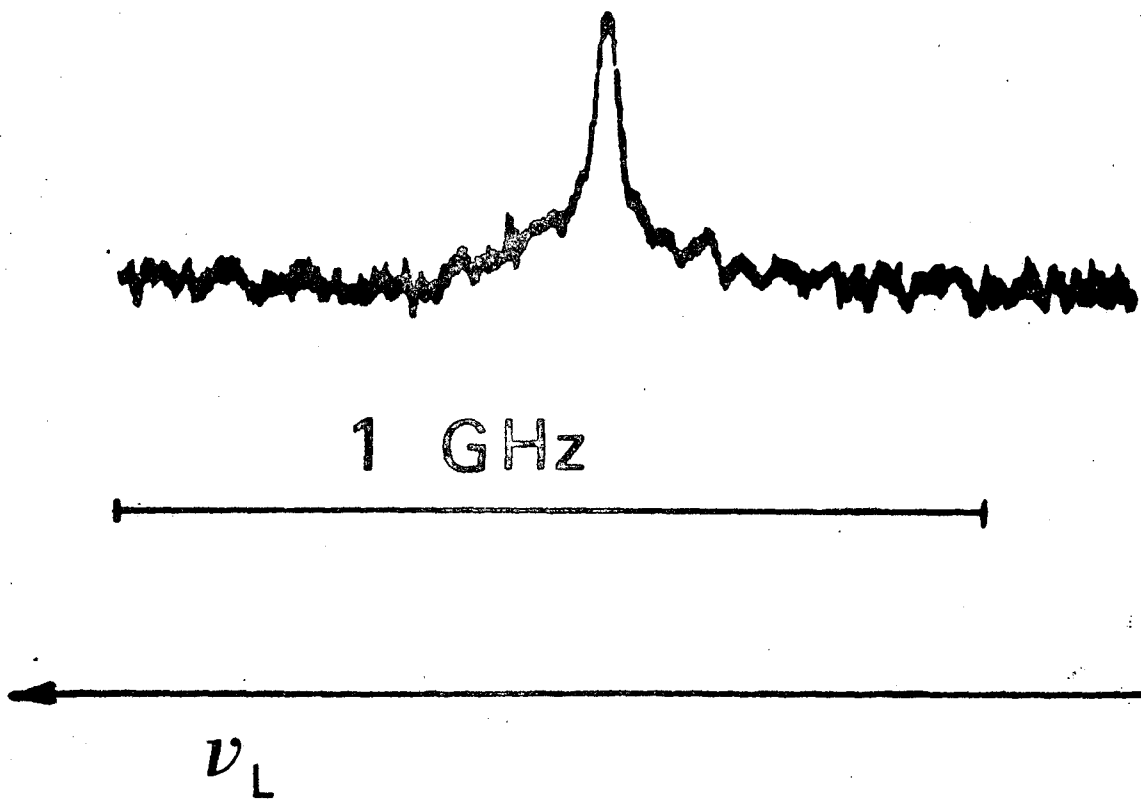


Figure 27 : Signal d'orientation résultant du couplage d'une orientation avec un "trou de population".

## CHAPITRE D

### DÉTECTION OPTOGALVANIQUE DU POMPAGE OPTIQUE

#### I. INTRODUCTION

Lorsqu'un gaz atomique dans lequel on entretient une décharge est éclairé par une lumière dont la longueur d'onde est celle d'une raie d'absorption des atomes, on observe en général une modification de l'impédance de la décharge. Ce phénomène, appelé effet optogalvanique, est lié principalement au fait que les modifications des populations atomiques induites par la source lumineuse produisent, par l'intermédiaire de divers processus collisionnels, des changements de la densité électronique (<sup>\*</sup>) dans la décharge (un certain nombre de ces processus seront discutés plus en détail dans la suite). L'effet optogalvanique est connu depuis longtemps [71] mais est l'objet d'un regain d'intérêt depuis la mise au point de lasers accordables. Cette méthode de détection, relativement aisée à mettre en oeuvre est extrêmement sensible et s'applique à de très nombreuses espèces atomiques [72] [73] [74], moléculaires [75] et même ioniques. D'autre part, l'utilisation pour l'excitation de deux faisceaux issus du même laser monomode a permis de montrer que, comme les méthodes optiques, la méthode de détection optogalvanique se prête facilement à des mesures spectroscopiques sans effet Doppler [76] [77] [78].

---

(<sup>\*</sup>) Le processus d'absorption s'accompagne également d'une modification de la distribution d'énergie des électrons [70], mais il a été montré expérimentalement, dans le cas d'une décharge dans le néon, que l'effet optogalvanique résulte directement d'une modification du taux d'ionisation dans la décharge [82].

Les caractéristiques de l'effet optogalvanique ont été étudiées par plusieurs auteurs [79] [80] [81] dans le but de déterminer les mécanismes responsables de son existence. Différents processus peuvent être invoqués pour expliquer l'influence de l'excitation optique sur le nombre d'électrons présents dans la décharge ; ils font intervenir des collisions ionisantes, par exemple entre deux atomes ou entre un atome et un électron.

Dans la majorité des cas, on constate que l'effet optogalvanique correspond à une diminution de l'impédance de la décharge. La raison en est que l'absorption des photons, qui porte l'espèce atomique ou moléculaire considérée A dans un niveau A<sup>\*</sup> plus facilement ionisable (parce que plus proche de la limite d'ionisation), s'accompagne d'une augmentation du nombre d'électrons par l'intermédiaire du processus :



Dans une telle situation, l'énergie cédée par la source lumineuse contribue à faciliter l'entretien de la décharge.

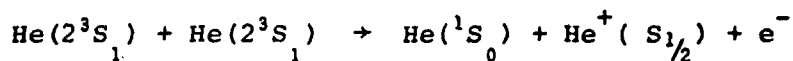
Il existe cependant des situations où l'effet optogalvanique peut être de signe opposé, par exemple celles où l'on excite dans un gaz rare une transition optique dont le niveau inférieur est métastable. On sait en effet que les atomes métastables ont, dans une décharge, des populations relativement grandes et jouent un rôle important dans les processus d'ionisation qui permettent son entretien ; on constate effectivement que l'excitation des niveaux métastables donne lieu à des signaux optogalvaniques particulièrement grands. Dans le cas du néon par exemple, qui est étudié dans les références [79] [80] [82] [83], l'effet optogalvanique correspond, suivant les conditions expérimentales (type et géométrie de la décharge, courant de fonctionnement), soit à une diminution, soit à une augmentation de l'impédance de la décharge (dans certains cas, l'excitation optique peut même éteindre la décharge). L'origine de ces changements de signe est la compétition entre différents processus reliant la population des niveaux métastables au nombre d'électrons présents dans la cellule. Au processus (i) déjà cité s'ajoute en particulier celui qui fait intervenir une "collision Penning" entre deux atomes métastables :



Ici, l'absorption, en diminuant la population d'un niveau métastable, s'accompagne d'une diminution du nombre d'électrons produits. Il semble que pour des courants de décharge faibles, ce dernier phénomène soit prépondérant.

Notons que la plupart des études citées ci-dessus ont été menées dans le cas de décharges continues (utilisation le plus souvent de lampes à décharges commerciales à cathodes creuses) ; l'effet optogalvanique peut cependant être observé facilement, quand les espèces atomiques ou moléculaires considérées s'y prêtent, avec des décharges "radio-fréquences" : on peut alors utiliser des électrodes extérieures à la cellule d'expérience [84] [75].

Si l'effet optogalvanique a été à l'heure actuelle très largement utilisé pour détecter la diminution de la population d'un niveau accompagnant l'absorption d'un faisceau résonnant, très peu d'expériences ont été menées concernant la possibilité de détection optogalvanique d'observables non scalaires : orientation ou alignement d'un niveau donné. L'existence d'une variation du nombre d'électrons produits, apparaissant quand on module l'orientation d'atomes métastables (et non plus leur population), est cependant connue depuis longtemps dans certains cas particuliers [85] [86]. L'explication de l'existence d'un tel effet tient à ce que le processus (ii) de collision Penning cité plus haut a une probabilité de se produire qui varie avec l'état angulaire des atomes entrant en collision. Dans le cas de l'hélium par exemple, la conservation du spin total, vérifiée expérimentalement [87], dans la réaction :



fait que la probabilité d'ionisation dépend fortement de l'orientation relative des spins des atomes métastables entrant en collision. L'effet optogalvanique peut donc se montrer une méthode de détection de l'orientation d'atomes métastables d'hélium, et l'on peut imaginer d'appliquer le même principe de détection à l'orientation du métastable  $^3P_2$  du néon, bien que son orientation ne soit pas purement de spin.

Nous avons donc décidé d'associer la méthode de détection optogalvanique à celle du pompage optique sélectif en vitesses dans le but de mettre en évidence et d'analyser des signaux optogalvaniques liés à des observables non scalaires créées dans les niveaux métastables du néon. La méthode du

pompage optique est tout à fait adaptée au problème considéré puisqu'elle permet de créer une observable donnée (ici orientation ou alignement) dans un niveau métastable donné. Elle permet donc d'obtenir des informations sur les processus qui sont à l'origine physique du signal optogalvanique. Nous verrons en particulier que la sélectivité en vitesse de l'excitation ainsi que la possibilité d'observer les effets d'une orientation (ou d'un alignement) purement nucléaire apportent des précisions supplémentaires sur ces processus.

Les expériences que nous avons réalisées concernent, comme dans les chapitres précédents, les niveaux  $^3P_2$  et  $^3P_0$  du néon pompés optiquement à l'aide d'un laser monomode balayable. Elles utilisent, soit un faisceau de pompage unique, soit deux faisceaux de pompage se propageant en sens opposés. Dans ce dernier cas, les effets de sélectivité en vitesses induits par le pompage peuvent être à l'origine ou non de signaux optogalvaniques sans effet Doppler suivant la nature des processus intervenant dans la détection (ce point sera discuté en détail dans la suite).

Avant de décrire les expériences réalisées, nous présenterons d'abord dans le paragraphe II différents processus par l'intermédiaire desquels la détection optogalvanique peut être sensible aux observables non scalaires créées par pompage optique dans un niveau métastable.

✓ Signalons auparavant que pendant le cours de ce travail et indépendamment de celui-ci ont été publiés par T.W. Hänsch et coll. d'une part, et A.L. Schawlow et coll. d'autre part, des résultats obtenus par une méthode s'apparentant à celle que nous avons utilisée. Des mesures spectroscopiques sans effet Doppler sont réalisées à l'aide de deux faisceaux se propageant en sens opposés selon un principe déjà bien connu [76], mais seule la polarisation respective des deux faisceaux est ici modulée. Des signaux optogalvaniques sont ainsi obtenus dans l'hélium [88] et plus récemment dans le néon [89]. Ils sont dus aux effets croisés de saturation de la transition optique utilisée, effets qui dépendent de la polarisation relative des faisceaux. Bien que ces expériences soient voisines de celles que nous décrivons dans la partie V de ce chapitre, il convient de souligner que, contrairement à ces auteurs, nous avons utilisé des faisceaux de pompage suffisamment peu intenses pour rendre négligeable tout effet de saturation optique, ce qui nous place dans une situation différente et en fait mieux définie en ce qui concerne l'origine possible des signaux optogalvaniques.

## II. ORIGINES POSSIBLES DES SIGNAUX

Les différents processus pouvant relier les observables non scalaires créées par le pompage optique dans un niveau métastable à l'impédance de la décharge sont multiples. Nous les avons classés ici selon leur origine physique de façon à mettre en évidence les propriétés par lesquelles ils diffèrent.

### • Processus de type (a)

Ce processus, par lequel l'alignement des atomes peut être détecté par effet optogalvanique, a été proposé récemment par Series [90]. Il fait intervenir la collision entre un atome métastable et un électron de la décharge. On se place dans le cas où la faible pression dans le gaz et la directivité du champ électrique font que, comme dans les expériences de M. Lombardi [92], la vitesse des électrons possède une direction privilégiée correspondant à celle de la densité de courant dans la décharge. La probabilité de collision atome + électron est alors différente selon que l'atome possède un alignement parallèle ou perpendiculaire à la vitesse électronique. Si la collision considérée est une collision ionisante (processus (i)), le nombre d'électrons produits dans la décharge par ce processus dépend de l'alignement des atomes. Il en résulte un effet optogalvanique (\*) d'autant plus grand que les propriétés de la décharge sont anisotropes.

Le processus de type (a) de détection de l'alignement atomique correspond à l'inverse de celui, connu depuis longtemps, qui permet de créer de l'alignement dans un niveau atomique excité par bombardement avec un faisceau d'électrons dirigés [91].

### • Processus de type (b)

Dans ces processus, qui permettent également de détecter l'alignement des atomes, intervient un effet d'anisotropie de la diffusion des atomes métastables. Si le temps de diffusion des métastables vers les parois de la

---

(\*) On peut également imaginer un effet optogalvanique dont la cause serait non pas la modification du nombre d'électrons, mais simplement celle de leur libre parcours moyen liée à l'alignement des atomes (collision non ionisante).

cellule diffère selon l'une ou l'autre des directions de l'espace, la durée de vie des atomes liée à leur temps de diffusion peut varier suivant que leur alignement est parallèle ou perpendiculaire à la direction privilégiée considérée. Dans ce cas, le nombre de métastables varie avec l'alignement créé et il en résulte un effet sur le nombre d'électrons produits dans la décharge, par l'intermédiaire des collisions ionisantes, soit de type (i) soit de type (ii).

La direction privilégiée de diffusion des métastables peut avoir différentes causes : anisotropie dans la géométrie de la cellule (cellule cylindrique par exemple), ou dans l'excitation même des métastables (d'une part, le faisceau lumineux détermine lui-même un cylindre de métastables alignés et leur diffusion peut se faire à des vitesses différentes dans une direction soit longitudinale soit transversale par rapport au faisceau ; d'autre part, l'excitation sélectionnant les atomes de vitesse longitudinale donnée est directement responsable d'une anisotropie dans la répartition des vitesses des atomes alignés).

• Processus de type (c)

Il s'agit de celui, déjà mentionné dans l'introduction, où une collision ionisante de type (ii) a lieu entre deux atomes métastables orientés par pompage optique. Nous avons vu que la conservation du spin total dans une collision Penning rend celle-ci moins probable lorsque les deux atomes possèdent deux orientations parallèles entre-elles : le nombre d'électrons produits dans la décharge diminue donc lorsqu'on oriente les atomes. Dans le cas d'atomes alignés, la section efficace de collision Penning peut également être modifiée, pour plusieurs raisons. En premier lieu, il peut se produire un phénomène analogue à celui qui vient d'être mentionné pour l'orientation. Mais on peut également faire intervenir la modification, liée aux variables atomiques orbitales, du potentiel d'interaction entre les deux atomes : celui-ci est différent selon que leurs alignements sont parallèles entre-eux ou perpendiculaires. Ces processus, qui concernent deux atomes ayant interagit avec le faisceau de pompage, peuvent donc s'appliquer à la détection optogalvanique, soit de l'orientation, soit de l'alignement.

• Processus de type (d)

Il fait intervenir une modification de la population des métastables par le pompage optique. Si un faisceau de pompage dont seule la polarisation est modulée ne peut pas, au 1<sup>er</sup> ordre en intensité, induire de modulation de la population du niveau métastable concerné, il n'en est pas de même au second ordre. On peut obtenir en effet un "trou de population" dans le niveau métastable par l'intermédiaire de deux cycles de pompage optique dans le cas d'un "système non fermé" (cf. chap. C, § II.3). On montrera plus loin (§ IV.2) que celui-ci peut être différent selon que la polarisation du faisceau de pompage est circulaire ou linéaire. Ce "trou de population" dans le niveau métastable créé au second ordre par le pompage se répercute sur le nombre d'électrons produits dans la décharge par l'intermédiaire des collisions ionisantes, soit de type (i), soit de type (ii). On obtient ainsi un effet optogalvanique qui dépend de la polarisation du faisceau de pompage.

Les 4 types de processus présentés ci-dessus ayant des origines physiques diverses donnent lieu à des effets optogalvaniques dont les propriétés sont différentes. Notons que dans tous les cas, la grandeur physique dont la méthode de détection optogalvanique mesure la variation est une grandeur scalaire (invariante par rotation), le nombre d'électrons présents dans la décharge. La variation de celui-ci ne peut être reliée à celle d'une grandeur non scalaire créée par pompage optique que de deux façons :

. Soit une anisotropie de la décharge rend la détection anisotrope : c'est le cas dans les processus (a) et (b). Une observable non scalaire peut alors être détectée directement par effet optogalvanique, et le signal obtenu est proportionnel à la valeur moyenne de cette observable, donc à l'intensité  $I$  du faisceau de pompage (nous nous limiterons ici à des intensités suffisamment faibles pour que le régime de pompage soit "linéaire").

. Soit la détection est isotrope, c'est-à-dire qu'aucune direction privilégiée ne peut être mise en évidence dans la cellule : c'est le cas pour les processus (c) et (d). La modification du nombre d'électrons fait alors nécessairement intervenir deux observables non scalaires de même ordre qui, par produit, peuvent donner une observable scalaire. Dans le processus (c), il s'agit des orientations (ou des alignements) des deux atomes métastables entrant en collision. Dans le processus (d), il s'agit de l'observable que



peut créer le faisceau de pompage de polarisation donnée qui interagit deux fois avec le même atome. Dans les deux cas, le signal obtenu est proportionnel au carré de la valeur moyenne de l'observable considérée ; il varie donc quadratiquement avec l'intensité du faisceau de pompage.

La dépendance du signal avec l'intensité  $I$  permet donc de séparer les processus en deux groupes nettement distincts correspondant ou non à une anisotropie de la décharge. A l'intérieur de chaque groupe, d'autres critères peuvent permettre de distinguer les processus :

Dans le processus (a) l'anisotropie est liée aux trajectoires électroniques, tandis que dans les processus (b) elle est liée à la diffusion des métastables du fait de la géométrie de la cellule ou de celle de l'excitation. Il suffira de faire varier les paramètres géométriques expérimentaux pour choisir entre les différents processus (a) et (b).

Les processus (c) et (d) diffèrent pour leur part par le nombre d'atomes métastables mis en jeu. Il est clair qu'une expérience de pompage optique sélectif en vitesses doit permettre de distinguer le processus (c) où interviennent deux atomes de vitesses différentes du processus (d) où un seul atome de vitesse donnée est concerné (\*). En particulier, un effet de pompage croisé entre deux faisceaux se propageant en sens opposés, se manifestera dans le premier cas, lorsqu'on balaie la fréquence du laser, par un signal optogalvanique large (de largeur comparable à la largeur Doppler), tandis que dans le deuxième cas on obtiendra un signal étroit lié aux atomes de vitesse longitudinale quasi-nulle interagissant simultanément avec les deux faisceaux (signal sans effet Doppler en fonction de la fréquence du laser).

Remarquons qu'il est parfaitement possible que plusieurs processus de détection différents coexistent : le signal total détecté est alors la somme de plusieurs contributions ayant l'une ou l'autre des propriétés citées plus haut.

---

(\*) Nous supposons négligeables dans ce raisonnement les effets des collisions changeant la vitesse des métastables en conservant leurs variables internes.

### III. DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Nous avons utilisé dans ces expériences la cellule déjà décrite dans le chapitre A. Elle était remplie de 50 mtorr de néon pur, pression qui a été choisie de façon à obtenir un signal optogalvanique maximum.

Une décharge faible est entretenue dans la cellule par l'intermédiaire de deux fils extérieurs qui prélèvent la tension aux bornes d'un circuit résonnant. Celui-ci est excité (\*) par un oscillateur fonctionnant à 50 MHz. Cet oscillateur, dont les plans nous ont été fournis par J.P. Grandin et X. Husson, est identique à celui qui est utilisé dans la référence [84] : un régime de fonctionnement oscillant d'une lampe RCA 829B (double tétrode) est provoqué par couplage entre sa grille et sa plaque. La lampe est alimentée sous une tension continue donnée. Son régime d'oscillation dépend directement de l'impédance de la décharge dans la cellule. Il peut être suivi soit sur le courant d'alimentation de la lampe, soit sur la tension de sa grille. C'est cette deuxième possibilité que nous avons utilisée en prélevant le signal optogalvanique basse fréquence (< 100 kHz) sur la grille. Ce signal alimente l'entrée d'une détection synchrone PAR 124 dont la fréquence de référence est celle de modulation de la polarisation du faisceau de pompage.

Comme dans les chapitres précédents, le faisceau de pompage est étendu de façon que les atomes évoluent en "régime de pompage" et sa polarisation est modulée par un cristal électrooptique excité à fréquence donnée (ici 1,3 kHz). Dans le cas des expériences faites avec deux faisceaux de pompage, deux cristaux électrooptiques excités à deux fréquences différentes sont utilisés. Le signal est alors démodulé par deux détections synchrones utilisées "en cascade" de la même façon que dans les expériences de pompage optique doublement sélectif en vitesses (cf. chap. C § III).

Suivant la valeur de la tension plaque appliquée à la lampe, différents régimes de décharge sont observés dans la cellule. Nous avons utilisé le régime de décharge le plus faible possible de façon à éviter des pertur-

---

(\*) L'accord du circuit résonnant se fait à l'aide d'un condensateur variable dont la capacité doit être soigneusement ajustée pour obtenir un signal maximum.

bations des asservissements du laser à colorant par le rayonnement de radiofréquence. En pratique, de bonnes conditions de fonctionnement sont obtenues avec une tension plaque de 65 V et un courant plaque de 30 mA. Le signal continu prélevé sur la grille est alors de l'ordre de 1V. Le bruit qui lui correspond à la sortie de la détection synchrone, avec une constante de temps de 0,3 s, est environ  $8 \times 10^{-7}$  de la tension continue.

#### IV. EXPERIENCES REALISEES AVEC UN FAISCEAU DE POMPAGE

Nous avons mené différentes expériences de ce type dans lesquelles soit l'intensité soit la polarisation du faisceau de pompage est modulée. Elles nous ont permis d'ajuster les paramètres de la décharge de façon à optimiser l'amplitude des signaux optogalvaniques obtenus. Nous avons pu d'autre part grâce à elles obtenir un certain nombre d'indications sur la nature des processus mis en jeu au niveau de la détection.

##### 1) Faisceau d'intensité modulée

Nous avons commencé par chercher les signaux optogalvaniques liés à un "trou de population" créé par le pompage dans le niveau métastable  $^3P_2$ . On utilise à cet effet un faisceau de polarisation donnée (circulaire ou linéaire) et d'intensité modulée en créneaux à 100 %. La longueur d'onde utilisée est, soit  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$ , soit  $\lambda = 6402 \text{ \AA}$ . Le signal obtenu quand on balaie la fréquence du laser autour de celle de la transition atomique a pour largeur la largeur Doppler de la transition et est semblable à un signal de fluorescence obtenu dans les mêmes conditions. Il est représenté sur la figure 28 pour la transition à  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$ . Son amplitude, pour une intensité de pompage d'environ 20 mW et une section de faisceau d'environ  $5 \text{ cm}^2$  est de l'ordre de  $8 \times 10^{-4}$  du signal continu prélevé sur la grille. Le signal obtenu pour l'autre transition à  $\lambda = 6402 \text{ \AA}$  est 50 à 100 fois plus petit (c'est-à-dire environ  $10^{-5}$  du continu). Cette différence dans l'amplitude des signaux s'explique par le fait, déjà vu précédemment, que l'on peut, avec la première transition, créer par pompage optique un "trou de population" dans le niveau métastable (le niveau  $2p_6$  peut se désexciter par émission spontanée vers d'autres niveaux que le  $^3P_2$ ), tandis que le "trou de population" que l'on peut créer avec la deuxième transition a une autre origine et est beaucoup plus petit (le niveau  $2p_9$  ne se désexcite par émission

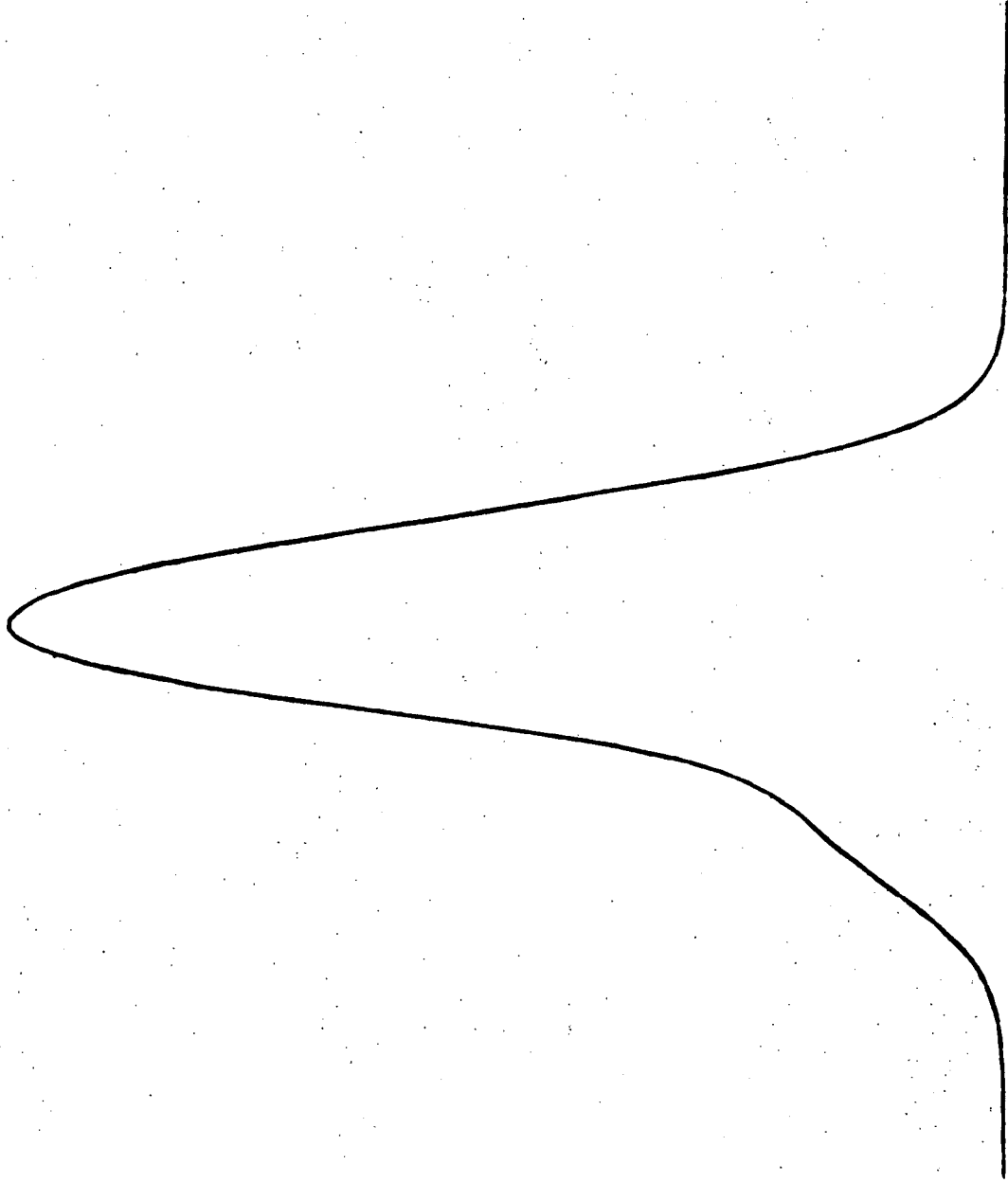


Figure 28 : Signal optogalvanique obtenu pour  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$  en intensité modulée. Son amplitude est de  $8 \times 10^{-4}$  du niveau continu de la tension grille. L'intensité de pompage est d'environ 20 mW sur une section du faisceau de  $5 \text{ cm}^2$ .

spontanée que vers le  $^3P_2$  (\*)).

Nous avons étudié l'amplitude de ces signaux en fonction de l'intensité  $I$  du pompage. La variation obtenue pour  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$  est portée sur la figure 29. Pour les deux transitions, nous avons vérifié que l'amplitude des signaux était proportionnelle à  $I$ . Nous avons opéré avec des intensités et un diamètre du faisceau de pompage tels que le "trou de population", détecté par absorption optique, varie lui-même linéairement avec  $I$  : la modification de la population du métastable par le pompage est petite. On peut donc conclure que dans ces conditions expérimentales le signal optogalvanique est proportionnel au "trou de population" dans le niveau métastable. Sa variation linéaire avec  $I$  correspond au fait que la grandeur physique qui est modulée par le pompage est une grandeur scalaire. D'autre part, aucun effet de saturation du signal optogalvanique n'apparaît ici, ce qui n'est pas surprenant étant donné la faible amplitude de ce signal.

## 2) Faisceau de polarisation modulée

Dans ces expériences, nous avons utilisé un faisceau de pompage d'intensité non modulée dont la polarisation est modulée en créneaux. Tout le reste du dispositif expérimental est identique à celui du paragraphe précédent. La cellule est placée dans un faible champ magnétique (d'amplitude 100 mG par exemple) longitudinal par rapport à la direction de propagation du faisceau de pompage.

Différentes façons de moduler la polarisation du faisceau ont été envisagées. Dans le cas où cette polarisation est soit circulaire alternativement droite et gauche ( $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ ), soit linéaire alternativement verticale et horizontale ( $\uparrow$ ,  $\leftrightarrow$ ), aucun signal optogalvanique n'a été observé pour l'une ou l'autre des deux transitions utilisées. Par contre, nous avons obtenu un signal lorsque la polarisation du faisceau est alternativement circulaire et linéaire.

---

(\*) Les signaux obtenus pour les deux transitions sont toujours de même signe pour un régime de décharge donné. Cependant, comme l'ont déjà observé de nombreux auteurs, ce signe dépend du régime de la décharge, comme l'amplitude du signal. Pour des raisons déjà citées plus haut nous avons opéré avec une décharge faible, en ajustant les différents paramètres pour que l'amplitude des signaux soit la plus grande possible.

Ce signal est représenté sur la figure 30 dans le cas du pompage avec la raie à  $\lambda = 6402 \text{ \AA}$ . Il a la même allure qu'un signal obtenu avec une intensité modulée (\*). Son amplitude correspond à une variation de l'ordre de  $3 \times 10^{-6}$  du niveau continu de la tension grille. Un signal semblable est obtenu à  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$ , mais d'amplitude à nouveau beaucoup plus grande (environ  $1,5 \times 10^{-4}$  du signal continu).

Nous avons, dans un premier temps, fait varier les paramètres géométriques de la décharge de façon à déterminer si le signal avait ou non pour origine une anisotropie de celle-ci. La position des fils extérieurs, jouant le rôle d'électrodes, qui permettent d'exciter la décharge a été changée. Nous avons également remplacé ces fils par des plaques de cuivre planes et parallèles de façon que la décharge soit la plus "capacitive" possible. Aucun effet de la position de ces électrodes sur le signal optogalvanique n'a été observé. Nous en concluons que ce signal ne résulte pas d'un processus de type (a). Il est d'ailleurs probable que dans le type de décharge que nous avons utilisé, la vitesse des électrons n'a pas de direction nettement privilégiée [92].

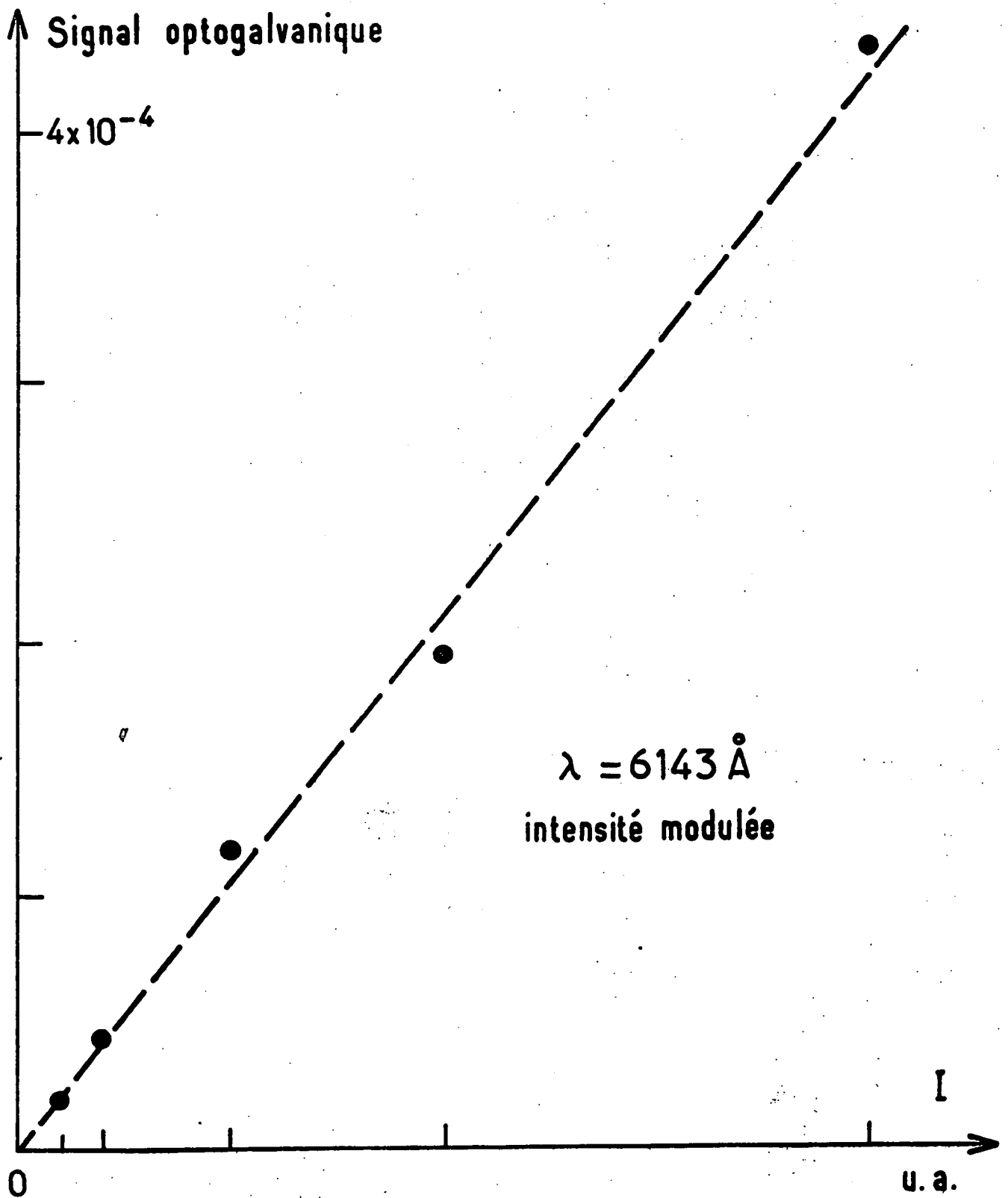
Nous avons également cherché si le fait que la cellule utilisée n'est pas exactement sphérique (\*\*\*) joue un rôle dans le mécanisme de détection. Plutôt que de changer l'orientation de la cellule, qui est rigidement liée au banc de pompage, nous avons changé la direction de propagation du faisceau, en changeant également celle du champ magnétique. Aucun effet sur le signal n'a été observé. Si le signal optogalvanique résultait d'un processus de type (b), il ne pourrait donc être lié qu'à la seule direction privilégiée existant au niveau de la décharge, la direction de propagation du faisceau de pompage.

Ces premiers tests indiquent donc que la détection ou bien est isotrope, ou bien possède une symétrie de révolution autour de cette direction de propagation. Cette conclusion est confirmée par le fait qu'aucun signal n'est obtenu quand la polarisation du faisceau de pompage est modulée

---

(\*) L'existence d'un pic étroit au sommet de la courbe tient probablement à une réflexion parasite du faisceau de pompage à l'intérieur de la cellule.

(\*\*) Il s'agit d'une sphère à laquelle sont adjoindes deux portions cylindriques opposées fermées chacune par une fenêtre plane.



**Figure 29** : Amplitude relative du signal optogalvanique obtenu pour  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$  en intensité modulée en fonction de l'intensité de pompage (l'intensité correspondant à la pleine échelle est d'environ 20 mW sur une section du faisceau de  $20 \text{ cm}^2$ ).

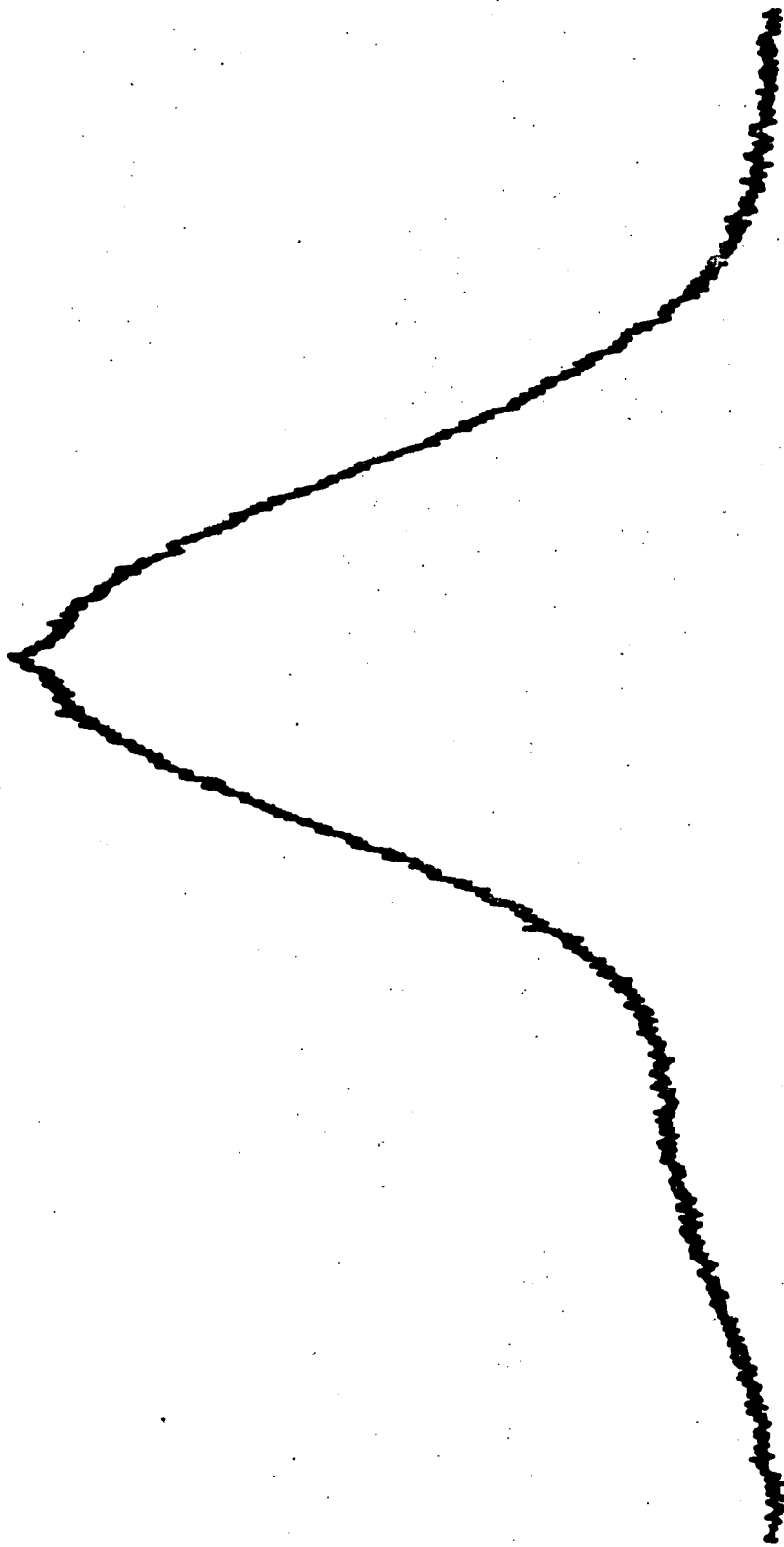


Figure 30 : Signal optogalvanique obtenu pour  $\lambda = 6402 \text{ \AA}$  en polarisation modulée. Son amplitude est de  $3 \times 10^{-6}$  du niveau continu de la tension grille. L'intensité du pompage est d'environ 10 mW sur une section du faisceau de  $5 \text{ cm}^2$ .



soit  $(\sigma^+, \sigma^-)$  soit  $(\uparrow, \leftrightarrow)$ .

Nous avons enfin étudié la dépendance de l'amplitude du signal avec l'intensité  $I$  du faisceau de pompage. Cette intensité a été elle-même suffisamment atténuée en étendant le faisceau de pompage pour que les signaux d'orientation ou d'alignement qu'on peut détecter à l'aide d'un faisceau sonde dans ces conditions expérimentales varient linéairement avec l'intensité. L'amplitude du signal optogalvanique est portée sur la figure 31 en fonction du carré de l'intensité pour la raie de pompage à  $\lambda = 6402 \text{ \AA}$ . On voit que cette amplitude est proportionnelle à  $I^2$ . Un résultat semblable est obtenu avec la raie à  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$ . Cette variation quadratique avec l'amplitude des observables créées par le pompage est la preuve que la détection est isotrope et que le processus responsable de l'effet optogalvanique doit donc être cherché dans les processus (c) ou (d).

Une constatation peut nous permettre dès maintenant de prévoir une prédominance du processus (d) par rapport au processus (c). Nous avons trouvé en effet que le signal obtenu pour  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$  est beaucoup plus grand que celui obtenu pour  $\lambda = 6402 \text{ \AA}$  aussi bien en polarisation modulée qu'en intensité modulée. Si, comme nous l'avons déjà vu, les "trous de population" créés dans le niveau métastable par le pompage en intensité modulée sont très différents pour les deux transitions, il n'y a aucune raison pour qu'il en soit ainsi pour l'orientation ou l'alignement qu'on obtient dans le niveau métastable quand seule la polarisation du faisceau est modulée. Or le signal optogalvanique obtenu par les processus (c) est directement proportionnel au carré de l'orientation ou de l'alignement des atomes entrant en collision. On s'attendrait donc à ce qu'il soit du même ordre de grandeur pour les deux transitions. Par contre, si l'origine du signal est un trou de population créé par le pompage optique au 2ème ordre [processus (d)], le signal sera a priori beaucoup plus grand si le niveau supérieur de la transition peut se désexciter par émission spontanée vers d'autres niveaux que le métastable  $^3P_2$ .

Pour le montrer, calculons le "trou de population" créé par deux cycles de pompage optique successifs avec un faisceau de pompage polarisé soit circulairement, soit linéairement. Celui-ci peut être déduit des résultats obtenus dans le chapitre C : il résulte d'un effet de pompage au 2ème ordre dû à un seul faisceau ( $\Gamma'_1 = \Gamma'_2 = \Gamma'$  ;  $\theta_1 = \theta_2 = 0$ ). A partir de l'ex-

pression (56), on peut écrire la composante de  $^{(2)}\sigma_g$  qui décrit cet effet :

$$^{(2)}\sigma_0^{(0)} = \frac{\Gamma^2}{2J_g + 1} \sum_k \mathcal{B}_k(J_g, J_e) C_p(k, k, 0) \beta_0^{(0)} \quad (61)$$

Les coefficients  $\mathcal{B}_k(J_g, J_e)$  et  $C_p(k, k, 0)$  sont donnés par les relations (52) et (59), tandis que  $\beta_0^{(0)}$  se déduit de (58) :

$$\beta_0^{(0)} = \sum_q \langle k k q - q | 0 0 \rangle \frac{\phi_q^{(k)}(\vec{e}_\lambda) \phi_{-q}^{(k)}(\vec{e}_\lambda)}{\gamma(1 q \omega_g + \gamma)} \quad (62)$$

Quand la polarisation du faisceau de pompage est circulaire ( $\vec{e}_\lambda$ ),  $^{(2)}\sigma_0^{(0)}$  est donc la somme de trois termes où apparaissent  $[\phi_0^{(0)}(\vec{e}_\lambda)]^2$ ,  $[\phi_0^{(2)}(\vec{e}_\lambda)]^2$  et  $[\phi_0^{(1)}(\vec{e}_\lambda)]^2$ . Quand elle est linéaire ( $\vec{e}_\mu$ ),  $^{(2)}\sigma_0^{(0)}$  est la somme de quatre termes où apparaissent  $[\phi_0^{(0)}(\vec{e}_\mu)]^2$ ,  $[\phi_0^{(2)}(\vec{e}_\mu)]^2$ ,  $\phi_2^{(2)}(\vec{e}_\mu) \phi_{-2}^{(2)}(\vec{e}_\mu)$  et  $\phi_{-2}^{(2)}(\vec{e}_\mu) \phi_2^{(2)}(\vec{e}_\mu)$ .

Pour les deux polarisations, les deux premiers termes sont identiques. Les trous de populations créés à l'ordre 2 ne diffèrent donc que par les termes :

$$\frac{\Gamma^2}{2J_g + 1} \mathcal{B}_1(J_g, J_e) C_p(1, 1, 0) \langle 1 1 0 0 | 0 0 \rangle \frac{[\phi_0^{(1)}(\vec{e}_\lambda)]^2}{\gamma^2} \quad (63)$$

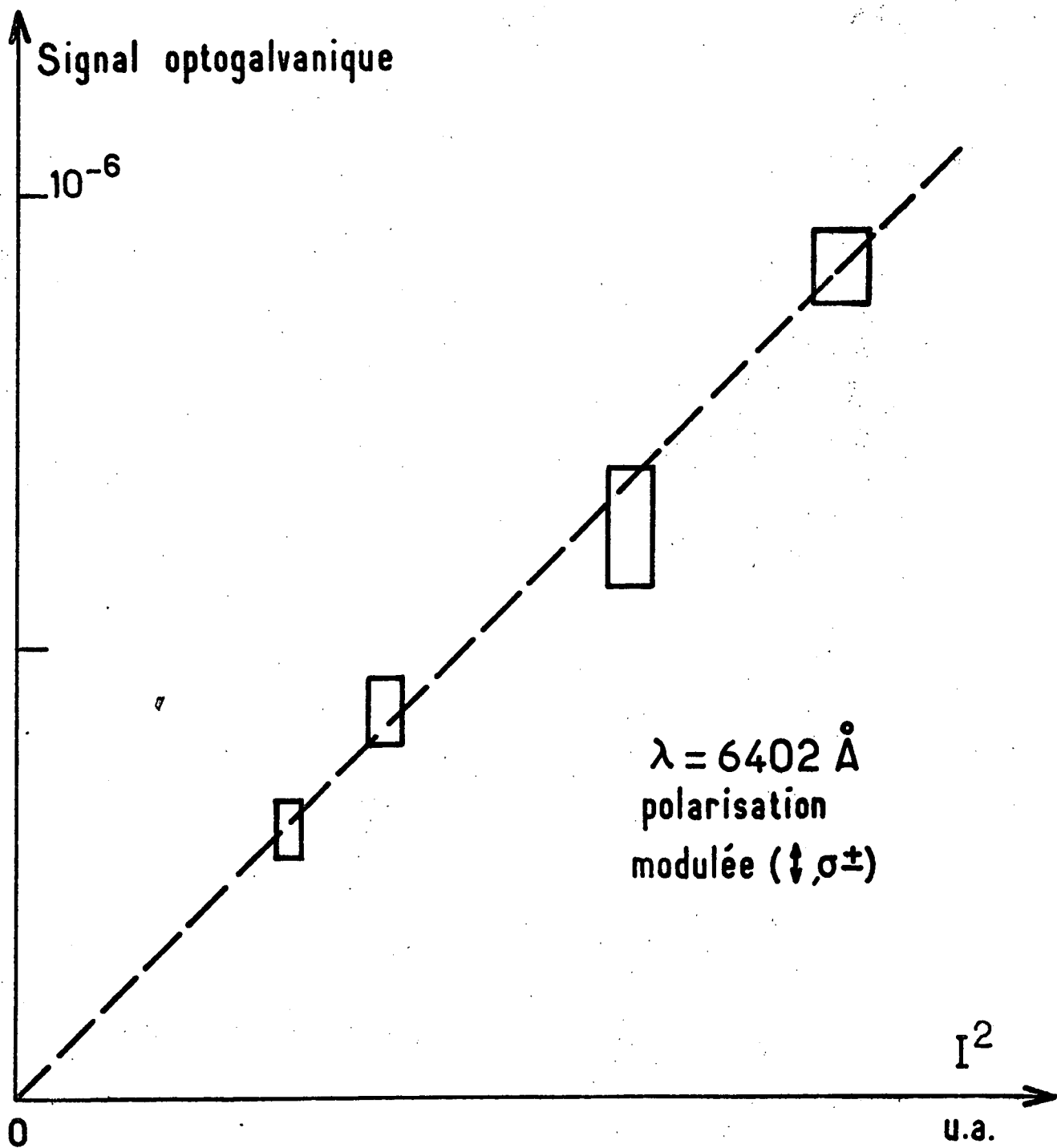
pour la polarisation circulaire (droite ou gauche),

$$\frac{\Gamma^2}{2J_g + 1} \mathcal{B}_2(J_g, J_e) C_p(2, 2, 0) \left[ \langle 2 2 2 - 2 | 0 0 \rangle \frac{\phi_2^{(2)}(\vec{e}_\mu) \phi_{-2}^{(2)}(\vec{e}_\mu)}{\gamma(21 \omega_g + \gamma)} + \langle 2 2 - 2 2 | 0 0 \rangle \frac{\phi_{-2}^{(2)}(\vec{e}_\mu) \phi_2^{(2)}(\vec{e}_\mu)}{\gamma(-21 \omega_g + \gamma)} \right] \quad (64)$$

pour la polarisation linéaire (verticale ou horizontale).

Le calcul de la différence de ces deux termes dans le cas d'une transition  $J_g = 2 \rightarrow J_e = 2$  (cas de la transition à  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$ ) donne la différence entre les trous de population créés par les deux polarisations de pompage. On trouve que celle-ci est proportionnelle à :

$$\left(1 - \frac{\Gamma_r}{\Gamma}\right) \left[ \frac{5}{\gamma^2} \left(1 + \frac{5}{6} \frac{\Gamma_r}{\Gamma}\right) + \frac{21}{\gamma^2 + 4 \omega_g^2} \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\Gamma_r}{\Gamma}\right) \right] \quad (65)$$



**Figure 31** : Amplitude relative du signal optogalvanique obtenu pour  $\lambda = 6402 \text{ \AA}$  en polarisation modulée en fonction du carré de l'intensité de pompage (l'intensité correspondant à la pleine échelle est d'environ 10 mW sur une section de faisceau de  $20 \text{ cm}^2$ ).

Le facteur  $(1 - \Gamma_r/\Gamma)$  dans cette expression provient du coefficient  $C_p(k, k, 0)$  donné dans (59). Le rapport  $\Gamma_r/\Gamma$  intervient également dans les termes entre crochets : le premier, qui correspond à la polarisation circulaire, est indépendant du champ magnétique (l'orientation créée est une observable longitudinale) ; le second en dépend au contraire (l'alignement créé est une observable transversale).

Comme les expériences réalisées avec un faisceau de pompage unique l'ont été dans un champ magnétique longitudinal de l'ordre de 100 mG, les effets optogalvaniques observés ici sont dus essentiellement à l'orientation créée pendant l'alternance où la polarisation du faisceau de pompage est circulaire.

#### V. EXPERIENCES REALISEES AVEC DEUX FAISCEAUX DE POMPAGE

Dans ces expériences, deux faisceaux de pompage issus du même laser se propagent en sens opposés dans la cellule, et l'on détecte le signal optogalvanique lié aux atomes ayant interagit avec les deux faisceaux. En raison de la sélectivité en vitesses de l'excitation par chacun des faisceaux, les effets optogalvaniques résultant de processus de type (c) ou de type (d) doivent pouvoir être distingués clairement dans ces expériences : un effet résultant de la collision entre deux atomes de vitesses différentes orientés (ou alignés) chacun par l'un des faisceaux s'accompagnera d'un signal large (de l'ordre de la largeur Doppler de la transition), tandis qu'un effet dû aux atomes ayant interagit avec les deux faisceaux s'accompagnera d'un signal étroit (sans effet Doppler).

Deux méthodes équivalentes peuvent être utilisées : ou bien l'on module les polarisations de chacun des faisceaux ( $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ ) ou ( $\uparrow$ ,  $\leftarrow$ ) à des fréquences différentes  $\omega_1$  et  $\omega_2$  et l'on détecte le signal modulé simultanément à ces deux fréquences, ou bien seule la polarisation d'un des faisceaux est modulée ( $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ ) par exemple, tandis que l'autre a une polarisation fixe ( $\sigma^+$  ou  $\sigma^-$ ). Il n'est pas nécessaire en effet de moduler la polarisation du deuxième faisceau : la modulation de la polarisation du premier faisceau fixe l'ordre  $k = 1$  ou  $2$  de l'observable qu'il crée ; cette observable est combinée avec une observable d'ordre  $k'$  créée par le second faisceau ; mais, comme la grandeur finalement mesurée, associée au signal optogalvanique, est scalaire, on ne peut avoir que  $k = k'$ . En d'autres termes, seule intervient

la polarisation relative des deux faisceaux de pompage. Nous avons d'ailleurs vérifié expérimentalement qu'on obtient les mêmes signaux en modulant ou non, à basse fréquence, la polarisation du deuxième faisceau. Une remarque semblable est faite dans la référence [88] où la géométrie expérimentale utilisée est la même.

Ces expériences ont été réalisées dans un premier temps dans la même cellule que celle utilisée dans la partie IV, qui est remplie de 50 mtorr de néon naturel. Elles nous ont permis d'étudier les signaux optogalvaniques liés à l'orientation et à l'alignement électroniques du niveau métastable  $^3P_2$ . Dans un deuxième temps, nous avons remplacé cette cellule par une cellule contenant du  $^21Ne$ , dans le but d'obtenir des signaux liés à l'orientation et l'alignement nucléaires du niveau métastable  $^3P_0$ .

#### 1) Détection d'observables électroniques

La figure 32 représente le signal optogalvanique obtenu quand on balaie la fréquence du laser autour de  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$ , avec la cellule remplie de néon naturel et dans le cas où la polarisation de chacun des deux faisceaux est modulée ( $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ ) aux fréquences respectives  $\omega_1/2\pi = 1,3 \text{ kHz}$  et  $\omega_2/2\pi = 80 \text{ Hz}$ . Le profil du signal, très différent de ceux des figures précédentes, est analogue à celui d'un signal d'orientation obtenu dans une expérience de pompage optique sélectif en vitesses à un faisceau (cf. chap. B).

La présence d'un pic étroit de grande taille dans ce profil indique que les processus (d) jouent un rôle important dans le mécanisme de détection. Ce pic est lié aux atomes métastables de vitesse longitudinale  $v_z$  quasi-nulle qui sont en résonance simultanément avec les deux faisceaux de pompage. Pour ces atomes, le "trou de population" créé à l'ordre 2 par un effet de pompage croisé n'est pas le même selon que les polarisations circulaires des deux faisceaux sont de même sens ou de sens opposés. Le calcul de ce "trou de population" est semblable à celui effectué dans le § IV ; sa variation est égale à 2 fois l'expression donnée en (63). Dans cette expression ne figure que le terme  $\phi_0^{(1)}$ , c'est-à-dire que le signal correspondant n'est sensible qu'à l'orientation créée par le pompage.

Le fond large superposé au pic peut avoir deux origines. Comme dans les expériences de pompage optique sélectif en vitesses à un faisceau,

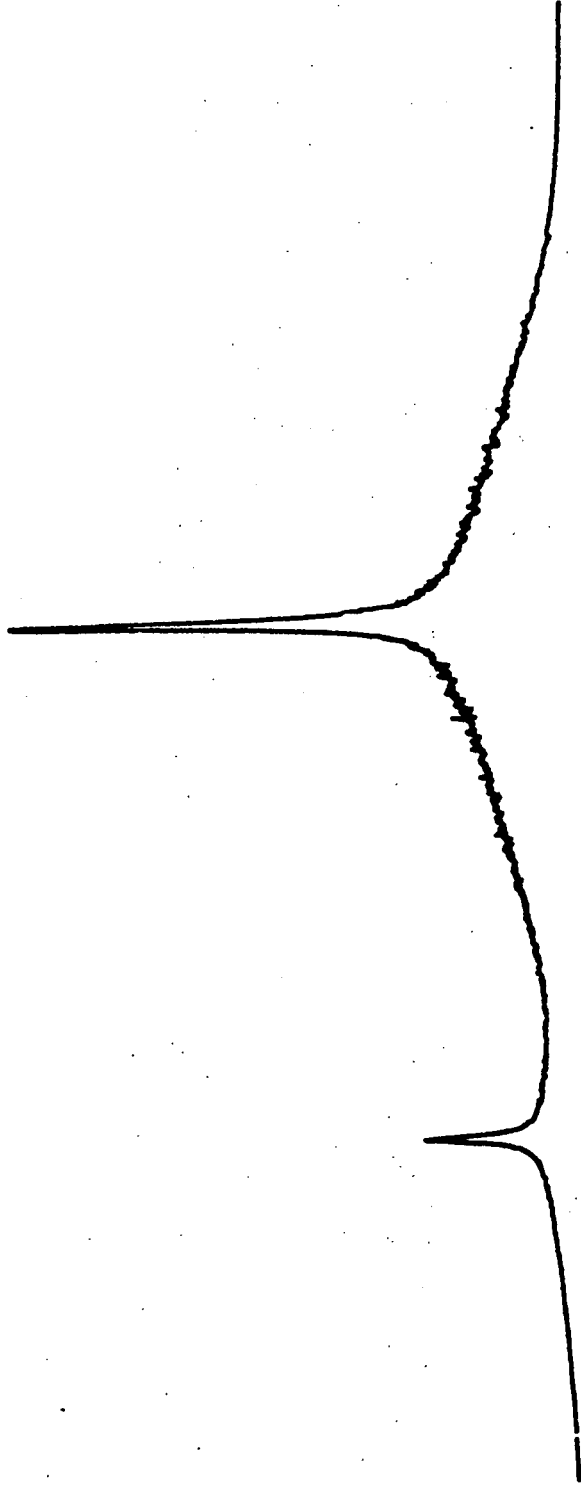


Figure 32 : Signal optogalvanique obtenu avec deux faisceaux de pompage de polarisation modulée ( $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ ) pour  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$ . L'amplitude du signal est de  $4 \times 10^{-5}$  de la tension grille.

on s'attend à observer par l'intermédiaire des processus (d) un fond lié aux collisions  $Ne^* - Ne$  qui ne détruisent pas totalement l'orientation : un atome métastable est orienté par l'un des deux faisceaux alors qu'il a la vitesse  $v_z$ , puis il subit une ou plusieurs collisions avant d'interagir avec l'autre faisceau alors qu'il a la vitesse  $-v_z$ . Le fond correspondant doit avoir une importance relative semblable à celle qu'il a dans les expériences de pompage optique sélectif en vitesses ( $\mathcal{I}_f/\mathcal{I}_p \approx 2$ ). Le rapport des surfaces du fond et du pic observé ici semble nettement plus grand (de l'ordre de 10) : il est raisonnable de penser qu'un signal large d'une autre origine est superposé ici, et qu'il peut être attribué au processus (c) qui met en jeu deux atomes orientés chacun par l'un des faisceaux lorsqu'ils ont des vitesses différentes, et subissant ensuite une collision entre eux.

Nous avons réalisé la même expérience dans un champ magnétique nul avec deux faisceaux de polarisation modulée ( $\uparrow, \leftarrow$ ). Le signal obtenu dans ces conditions est représenté sur la figure 33. Il est approximativement de même taille que le précédent. Comme celui-ci, il se compose d'un pic étroit et d'un fond large.

Le pic peut être attribué aux atomes de vitesse longitudinale quasi-nulle ayant été alignés par pompage optique. Le "trou de population" créé pour ces atomes par un effet de pompage croisé varie, selon que les polarisations linéaires des deux faisceaux sont parallèles ou perpendiculaires entre elles, d'une quantité égale à 2 fois l'expression donnée en (64). De la même façon que pour l'orientation, on peut donc conclure que le signal correspondant n'est sensible qu'à l'alignement transversal créé par le pompage.

L'importance du fond par rapport au pic est également plus grande que celle qu'on peut obtenir dans une expérience de pompage optique sélectif en vitesse (comme il est montré dans [34] et [41], l'importance relative du fond dans ce type d'expériences est plus faible pour l'alignement que pour l'orientation). D'autre part, le fond présente ici une forme anormale ("épaules" dans le profil) qu'on n'observe pas dans ces expériences. Il est donc clair qu'on observe, en plus du fond dû aux collisions qui changent la vitesse des atomes métastables tout en conservant partiellement leur alignement, un signal large d'origine différente. La forme particulière de son profil peut s'expliquer par le fait que hors résonance on excite des méta-

stables qui ont une vitesse relative plus grande et que les sections efficaces d'ionisation ont généralement une croissance rapide avec l'énergie de collision, deux raisons qui tendent à augmenter le taux d'ionisation et donc le signal optogalvanique. On peut cependant remarquer que rien de semblable n'est observé dans le cas du profil d'orientation de la figure 32 ; la présence d'"épaules" dans le profil d'alignement seulement tendrait donc à indiquer que leur origine est une modification du potentiel d'interaction entre deux atomes métastables alignés (processus c).

## 2) Détection d'observables nucléaires

Dans le néon naturel ( $^{20}\text{Ne}$  et  $^{22}\text{Ne}$ ), les expériences décrites ci-dessus ne peuvent être réalisées que sur le niveau métastable  $^3\text{P}_2$  qui possède un moment cinétique électronique. Il n'en est pas de même dans le  $^{21}\text{Ne}$  qui, comme nous l'avons vu dans le chapitre B (§ III), possède un spin nucléaire  $I = 3/2$ . On peut alors réaliser les mêmes expériences sur le niveau métastable  $^3\text{P}_0$  en utilisant la raie de pompage à  $\lambda = 6266 \text{ \AA}$ . C'est ce que nous avons fait avec une cellule scellée (la même que dans le chapitre B) contenant 12 mtorr de  $^{21}\text{Ne}$  et 50 mtorr d'hélium.

L'intérêt particulier des observables nucléaires est que l'obtention d'un signal optogalvanique associé élimine un certain nombre de processus cités plus haut (aucun effet des observables nucléaires sur les sections efficaces de collision).

La figure 34-a montre le signal optogalvanique obtenu lorsqu'on balaie la fréquence du laser en utilisant un faisceau de pompage de polarisation fixe ( $\sigma^+$  ou  $\sigma^-$ ) et un faisceau de polarisation modulée ( $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ ) à 55 kHz. L'amplitude du signal est d'environ  $2 \times 10^{-5}$  de la tension continue de la grille. Le profil du signal est très semblable à celui qu'on obtient dans une expérience de pompage optique sélectif en vitesses [34] : les six résonances étroites ont mêmes signes et mêmes amplitudes relatives que dans cette expérience ; elles correspondent aux trois résonances directes  $F = 3/2 \leftrightarrow F' = 1/2$ ,  $3/2$ ,  $5/2$ , et aux trois résonances croisées qui leur sont associées.

Comme déjà signalé, il est sûr que les processus (c) ne peuvent jouer aucun rôle dans la détection optogalvanique des observables nucléaires : les collisions entre atomes métastables  $^3\text{P}_0$  sont totalement insensibles à



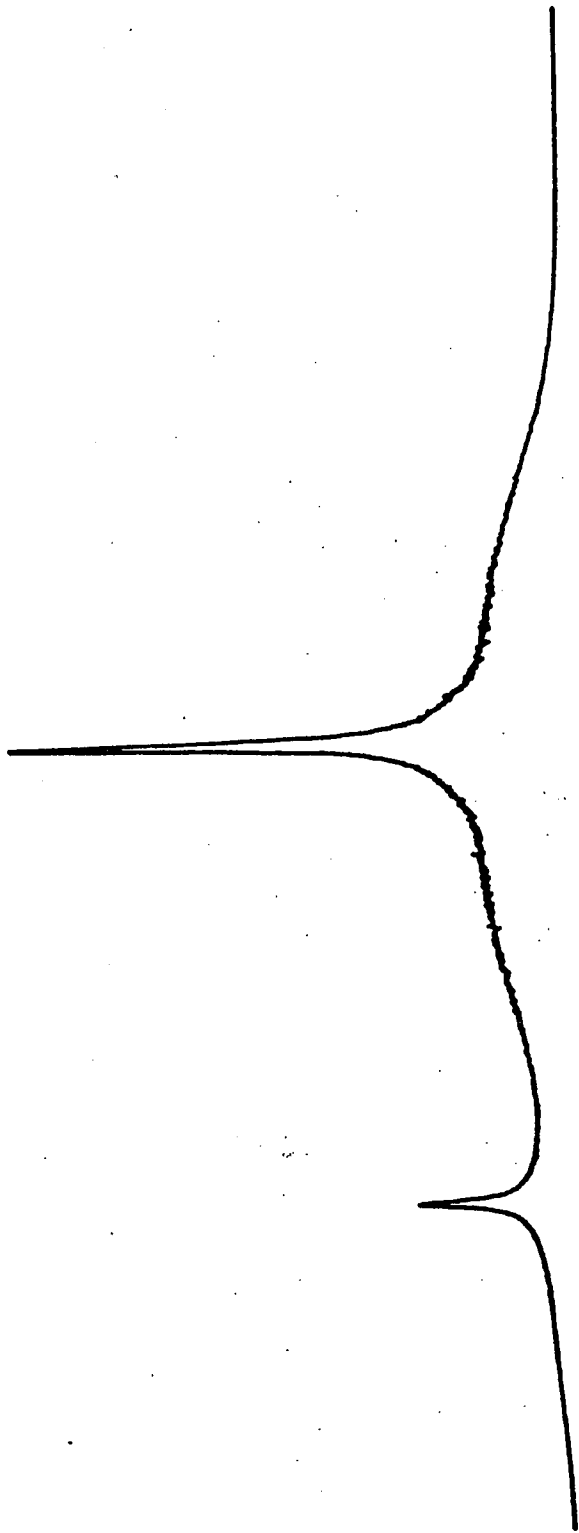


Figure 33 : Signal optogalvanique obtenu avec deux faisceaux de pompage de polarisation modulée ( $\uparrow, \leftrightarrow$ ) pour  $\lambda = 6143 \text{ \AA}$ .

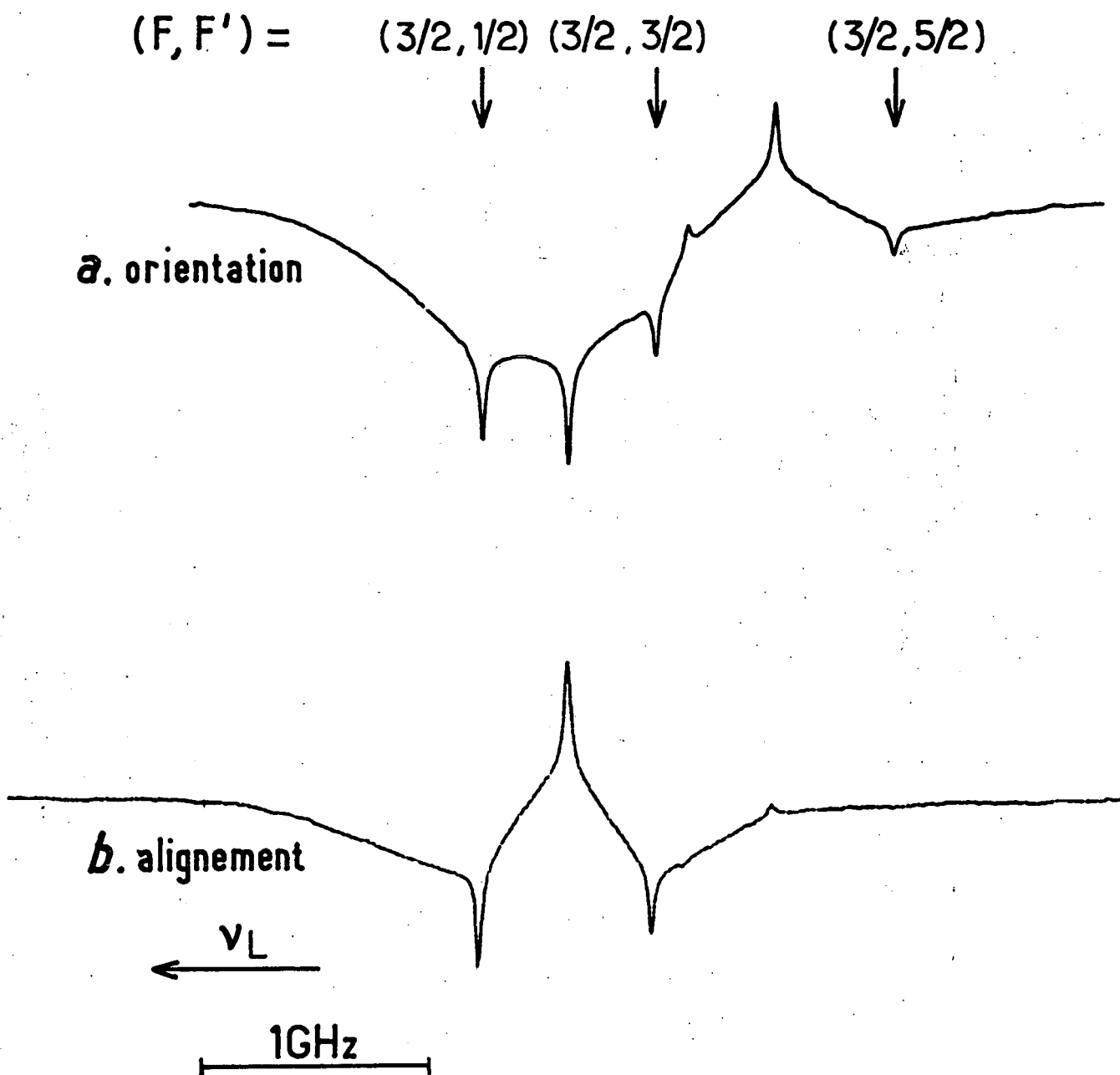


Figure 34 :

- a. Signal optogalvanique d'orientation nucléaire obtenu dans le  $^{21}\text{Ne}$  pour  $\lambda = 6266 \text{ \AA}$ . Un faisceau de pompage a une polarisation fixe circulaire tandis que l'autre a une polarisation modulée ( $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ ) à 55 kHz.
- b. Signal optogalvanique d'alignement nucléaire obtenu dans les mêmes conditions : les polarisations des deux faisceaux sont linéaires.

l'état des variables nucléaires de ces atomes. Le signal observé résulte donc probablement uniquement des processus (d).

Le fond dû aux collisions  $\text{Ne}^* - \text{He}$ , qui est important dans cette cellule, a été grandement atténué en modulant la polarisation du faisceau de pompage à une fréquence plus élevée que précédemment (55 kHz au lieu de 1,3 kHz). Notons que les signaux étroits ont pour leur part été peu affectés par cette augmentation de la fréquence de modulation, ce qui indique que le temps de réponse qui intervient dans la détection optogalvanique est court.

La similitude entre les signaux obtenus dans cette expérience de détection optogalvanique de l'orientation nucléaire, et dans une expérience de détection optique de la même orientation nucléaire créée par pompage optique sélectif en vitesses (c'est-à-dire créée de la même façon), indique qu'il existe un lien étroit entre ces deux expériences. Dans les deux cas, un premier faisceau de polarisation modulée ( $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$ ) crée une orientation nucléaire modulée pour les atomes métastables  $^3P_0$  de vitesse longitudinale  $v_z$ . Dans les deux cas, un deuxième faisceau de polarisation circulaire fixe (elle pourrait être également modulée) permet de détecter l'orientation nucléaire des atomes de vitesse  $-v_z$ . La détection se fait dans un cas sur l'absorption du deuxième faisceau, et dans l'autre sur le "trou de population" résultant du deuxième cycle de pompage optique induit par ce faisceau. Ces deux types de détection donnent des signaux très semblables car les effets mesurés (absorption ou "trou de population") sont proportionnels entre eux. En particulier, les signes des résonances sont les mêmes dans les deux expériences : avec la cellule utilisée, et comme il est expliqué dans [34], le pompage optique de type Dehmelt (pompage par dépopulation) est prépondérant, et la transition  $F \leftrightarrow F' = F + 1$  crée une orientation opposée à celles que créent les deux autres transitions. Cependant, ce changement de signe intervient aussi bien au niveau du pompage que de la détection, et les trois résonances directes sont de même signe (elles s'accompagnent toutes trois d'une augmentation de l'absorption dont d'une augmentation du "trou de population") ; le signe des résonances croisées au contraire dépend du couple de transitions considéré.

Si la polarisation des faisceaux de pompage est linéaire, l'une fixe et l'autre modulée à 55 kHz, on obtient en champ magnétique nul le signal représenté sur la figure 34-b. Ce signal, qui est associé à l'alignement

transversal nucléaire des atomes métastables  $^3P_0$ , est du même ordre de grandeur que le signal précédent associé à l'orientation nucléaire de ces atomes. Pour la même raison que ci-dessus, son profil est semblable à celui qu'on obtient par détection optique dans une expérience analogue de pompage optique sélectif en vitesses avec la même cellule. Dans les deux cas, la résonance directe ( $F = 3/2$ ,  $F' = 5/2$ ) n'est pas visible. Ceci peut être expliqué par une compensation, dans la pression d'hélium considérée, des effets de pompage Dehmelt (par dépopulation) et Kastler (par repopulation) dans le cas particulier de la transition ( $F = 3/2$ ,  $F' = 5/2$ ).

## VI. CONCLUSION DU CHAPITRE D

L'association de la méthode du pompage optique sélectif en vitesses avec celle de la détection optogalvanique nous a permis de montrer que l'effet optogalvanique peut très bien se prêter à la détection d'observables non scalaires.

L'étude des signaux optogalvaniques correspondants nous a permis d'analyser leur origine physique. Deux processus par lesquels le nombre d'électrons présents dans la décharge est modifié semblent jouer simultanément un rôle. Le premier fait intervenir la collision ionisante (collision Penning) entre deux atomes métastables orientés ou alignés par le pompage optique. Le second, dont l'effet est plus spectaculaire, est lié à la modification de la population des atomes métastables par deux interactions successives avec le ou les faisceaux de pompage.

Ce dernier processus donne la possibilité d'éliminer l'effet Doppler par l'utilisation de deux faisceaux de pompage se propageant en sens opposés, et d'obtenir de cette façon des profils d'orientation et d'alignement aussi bien électroniques que nucléaires analogues à ceux qu'on obtient par une méthode de détection optique.

## CONCLUSION

La diversité des expériences décrites dans ce mémoire montre que, grâce à l'utilisation des lasers accordables, la méthode du pompage optique peut être appliquée à des études très variées.

Il est maintenant possible d'obtenir des taux de polarisation importants (10 % et plus) même pour des espèces atomiques qui auparavant étaient difficilement accessibles. L'exemple du niveau métastable  $^5S$  de l'oxygène atomique, présenté dans la 1ère partie de ce mémoire, nous semble significatif. Ce métastable, peu étudié jusqu'alors, est pourtant d'un intérêt particulier par sa présence entre autres dans l'atmosphère terrestre. Nous avons montré qu'il se prête bien à des expériences de pompage optique, et que l'on a ainsi un moyen d'étudier les collisions concernant ce niveau. Le travail que nous avons présenté pourrait être poursuivi au prix d'un certain investissement expérimental de façon à augmenter à la fois le nombre de métastables créés et l'efficacité du pompage optique : d'une part, un gaz étranger pourrait être introduit dans la cellule de façon à catalyser la dissociation de l'oxygène ; d'autre part, l'utilisation d'un laser monomode à  $7773 \text{ \AA}$  pourrait permettre d'étudier plus finement les collisions subies par le métastable  $^5S$ . En particulier, il serait très intéressant de mettre en évidence des transferts d'orientation éventuels à partir de ce niveau vers d'autres niveaux atomiques ou moléculaires de l'oxygène ou même de l'azote, qui joue également un rôle important dans la haute atmosphère.

Dans la 2ème partie de ce mémoire, nous avons décrit différentes applications de la méthode du pompage optique sélectif en vitesses, méthode qui utilise un laser monomode. La possibilité de sélectionner, avec un faisceau de pompage, l'une des composantes de la vitesse des atomes fait que cette méthode se prête aussi bien à des mesures spectroscopiques sans effet

Doppler qu'à des études portant sur les collisions subies par les atomes à l'intérieur du profil Doppler. Deux expériences ont ainsi été réalisées sur les niveaux métastables du néon : elles ont conduit l'une à des mesures de sections efficaces de collision, l'autre à des mesures de structures hyper-fines et de déplacements isotopiques.

Nous avons ensuite généralisé cette méthode à la sélection de deux composantes de la vitesse des atomes en utilisant deux faisceaux de pompage non colinéaires. Nous avons observé de cette façon des signaux de pompage optique croisés associés aux atomes de vitesse quasi-nulle dans le plan des deux faisceaux. Certains de ces signaux font intervenir des déplacements lumineux qui ont ainsi été mis en évidence dans une situation expérimentale où l'effet Doppler est éliminé.

Nous avons montré d'autre part que la méthode de détection optique des observables créées par le pompage peut dans certains cas être remplacée par une méthode de détection optogalvanique, et ceci pour des observables non scalaires aussi bien électroniques que nucléaires. Cette méthode est aussi sensible qu'une méthode de détection optique, mais est cependant moins spécifique aussi bien pour le choix des observables détectées qu'en ce qui concerne la sélectivité en vitesses de la détection. Ainsi, pour sélectionner un nombre donné de composantes de la vitesse des atomes, cette méthode de détection nécessite un faisceau de pompage de plus que la méthode optique, et doit faire intervenir des effets de pompage croisés d'ordres supérieurs. Nous avons vu en effet que pour sélectionner les atomes de vitesse longitudinale quasi-nulle, on devait utiliser des effets de pompage croisés entre deux faisceaux se propageant en sens opposé ; la sélection de deux composantes de la vitesse des atomes nécessiterait quant à elle l'utilisation d'un effet de pompage croisé entre trois faisceaux coplanaires.

Par sa plus grande souplesse, il nous semble donc que la méthode de détection optique serait mieux adaptée à un projet d'expérience dans laquelle on sélectionnerait les atomes de vitesse quasi-nulle dans l'espace, en utilisant trois faisceaux de pompage non coplanaires. L'observation d'atomes presque immobiles dans la cellule présenterait plusieurs avantages : tout d'abord, on s'affranchirait ainsi de l'effet Doppler à tous les ordres ; d'autre part, la durée de vie collisionnelle de ces atomes est certainement

plus longue de celle des autres atomes (et ceci d'autant plus que leurs partenaires dans les collisions ont une masse plus grande) ; enfin, les problèmes d'élargissement des raies dûs à la distorsion des fronts d'onde des différents faisceaux utilisés [36] se trouveraient éliminés.

## APPENDICES

Les deux appendices qui suivent sont des compléments au chapitre C. Dans l'appendice 1, on montre que les effets d'interférences entre les deux faisceaux de pompage, ainsi que les effets d'interférences entre chacun de ces faisceaux et le faisceau de détection, jouent un rôle négligeable dans le calcul des effets de pompage croisés mené dans le § II de ce chapitre. L'influence des collisions sur les signaux de pompage optique doublement sélectif en vitesses est discutée dans l'appendice 2.



## APPENDICE 1

## 1 - POSITION DU PROBLEME

On se propose de résoudre, à l'ordre 4 en champ électrique, les équations d'évolution de l'opérateur densité du système atomique. Les causes d'évolution du système sont l'interaction avec les deux ondes incidentes de fréquences  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$ , l'émission spontanée, l'évolution libre sous l'effet du hamiltonien atomique  $H_0$  (\*), et enfin les processus de relaxation qui détruisent les observables de l'état fondamental (ou excité). On se place en représentation d'interaction par rapport à  $H_0$ ; les équations d'évolution de  $\tilde{\sigma}_g$ ,  $\tilde{\sigma}_e$  et  $\tilde{\sigma}_{eg}$  s'écrivent [15] :

$$\begin{aligned} \dot{\tilde{\sigma}}_g = & \frac{i}{\hbar} \left[ \tilde{D}_{ge1} \tilde{\sigma}_{eg} \mathcal{E}_1^* e^{i\Omega_1 t} - \tilde{\sigma}_{ge} \tilde{D}_{eg1} \mathcal{E}_1 e^{-i\Omega_1 t} \right] + \text{idem } (1 \rightarrow 2) \\ & + \mathcal{C}(\tilde{\sigma}_e) - \gamma \tilde{\sigma}_g \end{aligned} \quad (1-1)$$

$$\begin{aligned} \dot{\tilde{\sigma}}_e = & \frac{i}{\hbar} \left[ \tilde{D}_{eg1} \tilde{\sigma}_{ge} \mathcal{E}_1 e^{-i\Omega_1 t} - \tilde{\sigma}_{eg} \tilde{D}_{ge1} \mathcal{E}_1^* e^{+i\Omega_1 t} \right] + \text{idem } (1 \rightarrow 2) \\ & - \Gamma \tilde{\sigma}_e \end{aligned} \quad (1-2)$$

$$\dot{\tilde{\sigma}}_{eg} = \frac{i}{\hbar} \tilde{D}_{eg} \tilde{\sigma}_g \mathcal{E}_1 e^{-i\Omega_1 t} + \text{idem } (1 \rightarrow 2) - \Gamma_{eg} \tilde{\sigma}_{eg} \quad (1-3)$$

$\tilde{D}_{eg1}$  et  $\tilde{D}_{eg2}$  sont les éléments de matrice des opérateurs  $(\vec{e}_{\lambda_1} \cdot \vec{D})$  et  $(\vec{e}_{\lambda_2} \cdot \vec{D})$  entre les niveaux  $e$  et  $g$  ( $\vec{D}$  est l'opérateur dipolaire électrique) ;

---

(\*) Pour plus de simplicité, on va supposer ici que le champ magnétique appliqué est nul.

on a :

$$\hat{\mathcal{D}}_{eg1} = e^{iH_0 t} (\vec{e}_{\lambda_1} \cdot \vec{\mathcal{D}})_{eg} e^{-iH_0 t} = \mathcal{D}_{eg1} e^{i\Omega_0 t}$$

Dans l'équation (1-3), on a négligé les éléments de matrice de  $\sigma_e$  devant ceux de  $\sigma_g$  ; ceci est justifié par le fait que les deux durées de vie des niveaux e et g sont très différentes.

$\Gamma$  et  $\Gamma_{eg}$  sont les taux de relaxation de  $\sigma_e$  et  $\sigma_{eg}$ . On supposera la pression suffisamment faible pour que cette relaxation soit uniquement due au processus d'émission spontanée.  $\mathcal{C}(\sigma_e)$  décrit le transfert à partir du niveau e vers le niveau g par émission spontanée (somme sur toutes les directions et toutes les polarisations du photon émis) ;  $\mathcal{C}$  est un opérateur scalaire.

## 2 - CALCUL DE $\hat{\sigma}_g$ , A L'ORDRE 4 EN CHAMP ELECTRIQUE, EN NEGLIGEANT L'EMISSION SPONTANEE

Nous allons, dans un premier temps, résoudre par itération les équations (1-1) et (1-3) en négligeant la retombée par émission spontanée, de façon à mettre en évidence les différents types de termes qui apparaissent dans  $\hat{\sigma}_g$  à l'ordre 2 et à l'ordre 4 en champ électrique (\*).

A l'ordre le plus bas en champ électrique (ordre 0), l'opérateur densité  $\hat{\sigma}_g$  est isotrope :

$${}^{(0)}\hat{\sigma}_g = \frac{P_g}{2J_g + 1}$$

A l'ordre 1, l'équation (1-3) s'écrit :

$${}^{(1)}\hat{\sigma}_{eg} + \Gamma_{eg} {}^{(1)}\hat{\sigma}_{eg} = \frac{i}{\hbar(2J_g + 1)} (\vec{e}_{\lambda_1} \cdot \vec{\mathcal{D}})_{eg} \mathcal{E}_1 e^{i\Delta\Omega_1 t} + \text{idem (1} \rightarrow 2)$$

où l'on a posé  $\Delta\Omega_1 = \Omega_0 - \Omega_1$

Sa solution, pour des temps longs devant  $\tau_{eg} = \Gamma_{eg}^{-1}$  est de la forme :

$${}^{(1)}\hat{\sigma}_{eg} = \frac{i}{\hbar(2J_g + 1)} (\vec{e}_{\lambda_1} \cdot \vec{\mathcal{D}})_{eg} \mathcal{E}_1 \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_1} e^{i\Delta\Omega_1 t} + \text{idem (1} \rightarrow 2)$$

(\*) Dans cet appendice,  ${}^{(n)}\sigma$  représente un opérateur densité calculé à l'ordre n en amplitude du champ électrique, contrairement à la notation utilisée dans le chapitre C et dans l'appendice 2.

En reportant cette expression dans (1-1) et en intégrant de la même façon, on obtient  $\tilde{\sigma}_g$  à l'ordre 2 en champ électrique.

$$\begin{aligned} {}^{(2)}\tilde{\sigma}_g &= - \frac{\mathcal{D}^2 \mathcal{E}_1^2}{\kappa^2 (2J_g + 1)} \frac{2\Gamma_{eg}}{\gamma} \frac{A_{11}}{\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_1^2} + \text{idem } (1 \rightarrow 2) \\ &- \frac{\mathcal{D}^2 \mathcal{E}_1^* \mathcal{E}_2}{\kappa^2 (2J_g + 1)} \frac{e^{-i\Omega t}}{\gamma - i\Omega} A_{12} \left[ \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_2} + \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_1} \right] + \text{herm. conj.} \end{aligned} \quad (1-4)$$

avec

$$\Omega = \Omega_2 - \Omega_1$$

$$A_{ij} = (\vec{e}_{\lambda i}^* \cdot \vec{D})_{ge} (\vec{e}_{\lambda j} \cdot \vec{D})_{eg} \quad i, j = 1, 2$$

$$\mathcal{D}^2 = |\langle J_g \parallel \vec{D} \parallel J_e \rangle|^2$$

Dans cette expression, le premier terme décrit l'effet du pompage par le faisceau 1, le deuxième celui du pompage par le faisceau 2 : ces termes sont identiques à ceux qui apparaissent dans l'équation (36). Les deux termes supplémentaires correspondent au processus physique où le faisceau 2 (resp. 1) crée une cohérence optique que le faisceau 1 (resp. 2) transforme ensuite en population Zeeman dans le niveau métastable. Comme les atomes voient deux ondes de fréquences différentes  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$ , ces termes d'interférences oscillent à la fréquence  $\Omega_1 - \Omega_2$ .

En reportant ces différents termes dans (1-3), on obtient les termes sources intervenant dans l'évolution de  ${}^{(3)}\tilde{\sigma}_{eg}$ . Certains évoluent aux fréquences  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$ , d'autres aux fréquences  $\Omega_1 - 2\Omega_2$  et  $\Omega_2 - 2\Omega_1$ . Ces derniers, qui seront responsables de termes oscillants à ces mêmes fréquences, dans l'expression de  ${}^{(3)}\tilde{\sigma}_{eg}$  en régime stationnaire, ne pourront pas donner de termes sources statiques dans  ${}^{(4)}\tilde{\sigma}_g$ . Nous n'en tiendrons donc pas compte, en ne gardant dans  ${}^{(3)}\tilde{\sigma}_{eg}$  que les termes évoluant aux fréquences  $\Omega_1$  ou  $\Omega_2$ . Ils sont au nombre de 6 :

$$\left[ \begin{aligned}
 & -i \frac{\mathcal{D}^2 \mathcal{E}_1 \mathcal{E}_1^2}{\kappa^3 (2J_g + 1)} \frac{2\Gamma_{eg}}{\gamma} \frac{1}{\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_1^2} \overset{\sim}{\mathcal{D}}_{eg1} A_{11} e^{-i\Omega_1 t} + \text{idem } (1 \leftrightarrow 2) \\
 & -i \frac{\mathcal{D}^2 \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_1^2}{\kappa^3 (2J_g + 1)} \frac{2\Gamma_{eg}}{\gamma} \frac{1}{\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_1^2} \overset{\sim}{\mathcal{D}}_{eg2} A_{11} e^{-i\Omega_2 t} + \text{idem } (1 \leftrightarrow 2) \\
 & -i \frac{\mathcal{D}^2 \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_1^2}{\kappa^3 (2J_g + 1)} \frac{1}{\gamma - i\Omega} \left[ \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_2} + \frac{1}{\Gamma_{eg} - i\Delta\Omega_1} \right] \overset{\sim}{\mathcal{D}}_{eg1} A_{12} e^{-i\Omega_2 t} \\
 & \quad + \text{idem } (1 \leftrightarrow 2)
 \end{aligned} \right.$$

Ces termes s'intègrent de façon tout à fait analogue à ce qui a été fait pour  $\overset{(1)}{\sigma}_{eg}$ . Ils sont ensuite reportés dans (1-1) et l'on peut alors distinguer trois sortes de termes statiques dans  $\overset{(4)}{\sigma}_g + \gamma \overset{\sim}{\sigma}_g$  :

a) Termes à 1 seul faisceau

Il y en a un pour chaque faisceau, de la forme :

$$\frac{\mathcal{D}^4 \mathcal{E}_1^2 \mathcal{E}_1^2}{\kappa^4 (2J_g + 1)} \frac{2\Gamma_{eg}}{\gamma} \frac{1}{\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_1^2} \times \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_1} A_{11}^2 + \text{herm. conj.}$$

Leur intégration conduit dans  $\overset{(4)}{\sigma}_g$  à deux termes du deuxième ordre en intensité, l'un en  $I_1^2$  l'autre en  $I_2^2$ , correspondant à la saturation du pompage optique par chacun des faisceaux :

$$\overset{(4)}{\sigma}_g = \frac{4 \mathcal{D}^4 I_1^2}{\kappa^4 (2J_g + 1) \gamma^2} \frac{\Gamma_{eg}^2}{(\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_1^2)^2} A_{11}^2 + \text{idem } (1 \leftrightarrow 2)$$

b) Termes croisés en  $A_{11} A_{22}$

Les termes sources correspondants s'écrivent :

$$\frac{\mathcal{D}^4 \mathcal{E}_2 \mathcal{E}_1^2}{\kappa^4 (2J_g + 1)} \frac{2\Gamma_{eg}}{\gamma} \frac{1}{\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_1^2} \times \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_2} A_{22} A_{11} + \text{herm. conj.}$$

+ idem (1 ↔ 2)

Leur intégration donne dans  $(4) \overset{\sim}{\sigma}_g$  la contribution :

$$(4) \overset{\sim}{\sigma}_g = \frac{2 \mathcal{D}^4 I_1 I_2}{\mathcal{N}^4 (2J_g + 1) \gamma^2} \frac{\Gamma_{eg}}{\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_1^2} \left[ \frac{\Gamma_{eg}}{\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_2^2} [A_{22}, A_{11}] + - \frac{i\Delta\Omega_2}{\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_2^2} [A_{22}, A_{11}] \right] \\ + \text{idem } (1 \leftrightarrow 2)$$

On retrouve ici les termes croisés donnés dans (37) et (38).

c) Termes croisés en  $A_{21} A_{12}$

Les termes sources correspondants s'écrivent :

$$\frac{\mathcal{D}^4 g_2^2 g_1^2}{\mathcal{N}^4 (2J_g + 1)} \frac{1}{\gamma - i\Omega} \left[ \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_2} + \frac{1}{\Gamma_{eg} - i\Delta\Omega_1} \right] \times \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_2} A_{21} A_{12} + \text{herm. conj.} \\ + \text{idem } (1 \leftrightarrow 2 \text{ et } \Omega \leftrightarrow -\Omega)$$

Ils proviennent des termes d'interférence dans  $(2) \overset{\sim}{\sigma}_g$ . Leur intégration donne dans  $(4) \overset{\sim}{\sigma}_g$  la contribution :

$$(4) \overset{\sim}{\sigma}_g = \frac{\mathcal{D}^4 I_1 I_2}{\mathcal{N}^4 (2J_g + 1) \gamma (\gamma - i\Omega)} \left[ \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_2} + \frac{1}{\Gamma_{eg} - i\Delta\Omega_1} \right] \times \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_2} A_{21} A_{12} \\ + \text{herm. conj.} + \text{idem } (1 \leftrightarrow 2 \text{ et } \Omega \leftrightarrow -\Omega)$$

(1-5)

### 3 - CONTRIBUTION DES TERMES D'INTERFERENCES AU SIGNAL DETECTE

Dans l'opérateur densité  $(4) \overset{\sim}{\sigma}_g$  apparaissent deux sortes de termes croisés en  $I_1 I_2$ . Les termes en  $A_{11} A_{22}$  proviennent de termes statiques dans  $(2) \overset{\sim}{\sigma}_g$ , tandis que les termes en  $A_{21} A_{12}$  proviennent de termes d'interférences, oscillant à la fréquence  $\Omega = \Omega_2 - \Omega_1$ , associés à un effet de battement entre les fréquences  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$  vues par un atome de vitesse  $\vec{v}$  donnée. Le niveau  $g$  a un faible taux de relaxation  $\gamma$ , et la réponse du système atomique dans ce niveau à l'excitation oscillante de fréquence  $\Omega$  n'est appréciable que dans un petit domaine de fréquence centré en  $\Omega = 0$  et de largeur  $\gamma$ . La fréquence  $\Omega$  étant directement reliée à la vitesse des atomes, c'est seulement pour les atomes appartenant au petit domaine de vitesse correspondant, de largeur  $\gamma/k$ , que les termes en  $A_{12} A_{21}$  dans  $(4) \overset{\sim}{\sigma}_g$  sont importants.

Nous allons montrer dans ce paragraphe que lorsqu'on calcule le signal dû aux termes croisés en  $I_1 I_2$ , ce qui se fait par intégration sur les composantes  $v_x$  et  $v_z$  de la vitesse des atomes, la contribution des termes en  $A_{21} A_{12}$  est négligeable devant celle des termes en  $A_{11} A_{22}$  car le nombre d'atomes participant au signal est beaucoup plus petit (dans un rapport  $\gamma/\Gamma_{eg}$ ).

Pour discuter de la grandeur des signaux en question, il est utile de transformer l'expression donnée en (1-5). Pour cela on remarque que :

$$\frac{1}{\gamma + i\Omega} = \frac{\gamma}{\gamma^2 + \Omega^2} + \frac{i\Omega}{\gamma^2 + \Omega^2}$$

On peut alors réécrire les termes croisés en  $A_{21} A_{12}$  ou  $A_{12} A_{21}$  sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} (4) \nu_{\sigma g} &= \frac{2 \mathcal{D}^4 I_1 I_2}{\gamma^2 + \Omega^2} \times \\ &\left\{ \left[ \frac{\Gamma_{eg}^2 - \Delta\Omega_2^2}{(\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_2^2)^2} A_{21} A_{12} + \frac{\Gamma_{eg}^2 - \Delta\Omega_1^2}{(\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_1^2)^2} A_{12} A_{21} + \frac{\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_1 \Delta\Omega_2}{(\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_1^2)(\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_2^2)} [A_{21}, A_{12}] + \right. \right. \\ &\left. \left. + \frac{\Omega}{\gamma} \left[ \frac{2\Gamma_{eg} \Delta\Omega_2}{(\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_2^2)^2} A_{21} A_{12} - \frac{2\Gamma_{eg} \Delta\Omega_1}{(\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_1^2)^2} A_{12} A_{21} - \frac{2\Gamma_{eg} \Omega}{(\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_1^2)(\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_2^2)} [A_{21}, A_{12}] + \right] \right\} \end{aligned}$$

Chacun des termes contenus dans cette expression contient le produit de deux courbes de Lorentz (en absorption ou en dispersion) de variables  $\Delta\Omega_1$  ou  $\Delta\Omega_2$  et de demi-largeur  $\Gamma_{eg}$ . Ils sont donc d'une forme analogue à celle des termes croisés en  $A_{11} A_{22}$ ; mais ils sont maintenant précédés, soit du coefficient

$$\frac{1}{\gamma} \frac{\gamma}{\gamma^2 + \Omega^2}$$

soit du coefficient

$$\frac{1}{\gamma} \frac{\Omega}{\gamma^2 + \Omega^2}$$

alors que les autres étaient simplement multipliés par  $\frac{1}{\gamma^2}$ .

Ces termes doivent maintenant être sommés sur les vitesses des atomes après avoir été multipliés par la fonction de détection comme il est

fait en II.4.b . Il est alors commode d'introduire le vecteur  $\vec{K}$  défini par :

$$\vec{K} = \vec{k}_1 - \vec{k}_2$$

et l'on a :

$$\Omega = \vec{K} \cdot \vec{v}$$

Les coefficients  $\frac{\gamma}{\gamma^2 + \Omega^2}$  et  $\frac{\Omega}{\gamma^2 + \Omega^2}$  dans les intégrales sont

des fonctions de Lorentz qui ne sont non nulles que dans un domaine de vitesse correspondant à  $|v_u| \lesssim \gamma/K$  où  $v_u$  est la projection de  $\vec{v}$  sur  $\vec{K}$ . Ce domaine est beaucoup plus étroit que les domaines où les fonctions de pompage et de détection sont non nulles (respectivement  $|v_1| \lesssim \Gamma_{eg}/k$ ,  $|v_2| \lesssim \Gamma_{eg}/k$  et  $|v_z| \lesssim \Gamma_{eg}/k$ ). Si les deux faisceaux ne sont pas parallèles ( $K \neq 0$ ), ces coefficients supplémentaires introduisent une nouvelle sélection sur les vitesses nettement plus sévère que celle des signaux calculés en II.4. Les intégrales correspondantes vont donc être plus petites d'un facteur de l'ordre de  $\Gamma_{eg}/\gamma$  (et même  $\Gamma_{eg}^2/\gamma^2$  pour le dernier terme).

#### 4 - CONTRIBUTION DUE A L'EMISSION SPONTANEE

Un calcul tout à fait analogue au précédent peut être fait de façon à mettre en évidence dans  ${}^{(2)}\nu_{\sigma_g}$  et  ${}^{(4)}\nu_{\sigma_g}$  les termes dus à l'émission spontanée.

On montre facilement que l'opérateur densité  ${}^{(2)}\nu_e$  créé à l'ordre 2 en champ électrique s'écrit :

$${}^{(2)}\nu_e = \left\{ \frac{\mathcal{D}^2 \mathcal{E}_1^2}{\kappa^2 (2J_g + 1)} \frac{2\Gamma_{eg}}{\Gamma} \frac{E_{11}}{\Gamma_{eg}^2 + \Delta\Omega_1^2} + \text{idem (1} \rightarrow 2) \right\} \\ + \left\{ \frac{\mathcal{D}^2 \mathcal{E}_1^* \mathcal{E}_2}{\kappa^2 (2J_g + 1)} \frac{e^{-i\Omega t}}{\Gamma - i\Omega} E_{21} \left[ \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_2} + \frac{1}{\Gamma_{eg} - i\Delta\Omega_1} \right] + \text{herm. conj.} \right\}$$

$$\text{où } E_{ij} = (\vec{e}_{\lambda i} \cdot \vec{D})_{eg} (\vec{e}_{\lambda j}^* \cdot \vec{D})_{ge}$$

Au deuxième ordre en champ électrique, l'émission spontanée va donc ramener dans  ${}^{(2)}\sigma_g$ , en plus des deux termes statiques dus à chacun des faisceaux, deux termes oscillants de la forme :

$$\frac{\mathcal{D}^2 \mathcal{E}_1^* \mathcal{E}_2}{\kappa^2 (2J_g + 1)} \frac{e^{-i\Omega t}}{\Gamma - i\Omega} \mathcal{E}(E_{21}) \left[ \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_2} + \frac{1}{\Gamma_{eg} - i\Delta\Omega_1} \right] + \text{herm. conj.}$$

Ces termes sont analogues aux termes oscillants de (1-4) ; on passe des uns aux autres en remplaçant  $-A_{12}$  par  $\frac{\mathcal{E}(E_{21})}{\Gamma - i\Omega}$ . Remarquons que  $\mathcal{E}(E_{ij})$  contient le coefficient  $\Gamma_r$  qui est de l'ordre de grandeur de  $\Gamma$ . Au 4ème ordre en champ électrique, ces termes sont responsables de termes statiques dans  $^{(4)}\sigma_g$  soit directement par un effet de dépopulation soit par un effet de pompage (retombée incluse). Les deux types de termes correspondants dans  $^{(4)}\sigma_g$  s'écrivent :

$$- \frac{D^4 I_1 I_2}{K^4 (2J_g + 1) \gamma (\gamma - i\Omega)} A_{21} \frac{\mathcal{E}(E_{21})}{\Gamma - i\Omega} \left[ \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_2} + \frac{1}{\Gamma_{eg} - i\Delta\Omega_1} \right] \times \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_2}$$

+ herm. conj. + idem (1 ↔ 2, Ω ↔ -Ω)

et :

$$+ \frac{D^4 I_1 I_2}{K^4 (2J_g + 1) \gamma (\gamma - i\Omega)} \frac{\mathcal{E}[E_{12} \cdot \mathcal{E}(E_{21})]}{\Gamma (\Gamma - i\Omega)} \left[ \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_2} + \frac{1}{\Gamma_{eg} - i\Delta\Omega_1} \right] \times \frac{1}{\Gamma_{eg} + i\Delta\Omega_2}$$

+ herm. conj. + idem (1 ↔ 2, Ω ↔ -Ω)

La dépendance en fréquences de ces termes est analogue à celles des termes de (1-5) avec cependant le facteur supplémentaire  $\frac{1}{\Gamma - i\Omega}$ . Leur contribution au signal détecté, qui s'obtient en intégrant sur les vitesses des atomes, est du même ordre de grandeur que celle des termes de (1-5). En effet, le domaine d'intégration où le signal est appréciable est, comme nous l'avons vu dans le paragraphe précédent, de l'ordre de  $\gamma/K$ , et dans ce domaine la fonction  $\frac{1}{\Gamma - i\Omega}$  peut être approximée par  $1/\Gamma$ .

## 5 - INTERACTION AVEC LE FAISCEAU SONDE

Nous avons admis dans II.4 que les effets de cohérences entre les faisceaux de pompage et le faisceau sonde apportaient au signal une contribution négligeable, et nous n'avons donc considéré l'interaction du système atomique avec le champ électrique  $\mathcal{E}_S$  de la sonde qu'après la préparation du système par les deux faisceaux de pompage. En toute rigueur, il faudrait tenir compte également des processus où le système interagit avec le champ  $\mathcal{E}_S$  entre deux interactions avec les champs  $\mathcal{E}_1$  et  $\mathcal{E}_2$ , mais on montre facilement que ces autres processus peuvent être négligés.



Considérons par exemple le processus où le système atomique interagit d'abord deux fois avec le champ  $\mathcal{E}_1$ , de façon que l'opérateur densité intermédiaire  $^{(2)}\sigma_g$  soit statique, puis avec le champ  $\mathcal{E}_S$ , puis deux fois avec le champ  $\mathcal{E}_2$ . L'opérateur densité  $^{(4)}\sigma_g$  intermédiaire est oscillant à la fréquence  $\Omega_2 - \Omega_S$ . La cohérence optique créée à l'ordre 5 et évoluant à la fréquence  $-\Omega_S$  est donc pondérée par un facteur  $\frac{1}{\gamma + i(\Omega_2 - \Omega_S)}$ . Pour une raison tout à fait identique à celle qui a été vue dans les paragraphes précédents dans le cas de l'interaction cohérente avec les deux faisceaux de pompage, la présence de ce facteur dans l'intégration sur les vitesses des atomes va diminuer la contribution de ce processus d'un facteur  $\Gamma_{eg}/\gamma$  au moins (on a supposé que le faisceau sonde n'est parallèle à aucun des faisceaux de pompage). Un raisonnement similaire peut être fait avec les autres processus.

En résumé, et comme nous l'avons admis dans II, le fait que les trois faisceaux utilisés issus du même laser ne sont pas 2 à 2 colinéaires permet de n'envisager que le processus où le système atomique subit un cycle de pompage optique par un faisceau de pompage, puis un deuxième cycle par l'autre, puis enfin est sondé par le faisceau de détection.

APPENDICE 2

Les expériences que nous avons réalisées ont été faites avec une cellule contenant 10 mtorr de Néon pur. Bien que cette pression soit faible, on sait, par des expériences de pompage optique sélectif en vitesse à un seul faisceau, que l'effet des collisions n'est pas totalement négligeable dans ces conditions, et qu'il modifie le profil des signaux obtenus. Nous avons donc repris le calcul de  ${}^{(2)}\tilde{\sigma}_g$  de façon à prévoir qualitativement l'effet des collisions dans le niveau métastable sur les signaux de pompage optique croisé à deux faisceaux : on montre en particulier que les collisions conservent la parité des signaux par rapport à  $\Omega_L - \Omega_0$  et par rapport à  $\omega_g$ .

1 - EVOLUTION DE  $\tilde{\sigma}_g$  SOUS L'EFFET DES COLLISIONS

Nous n'avons dans le § II tenu compte des collisions subies par les atomes métastables, que par l'intermédiaire du terme de relaxation  $-\gamma \tilde{\sigma}_g$  dans l'évolution de l'opérateur densité. La relaxation dans le niveau  $g$  peut avoir différentes causes physiques : processus radiatif, diffusion des atomes hors des faisceaux de pompage, collisions, etc... Le taux de relaxation  $\gamma$  peut donc être écrit sous la forme :

$$\gamma = \gamma_0 + \gamma_c$$

où l'on a isolé le taux de relaxation  $\gamma_c$  dû aux collisions avec les autres atomes (\*). A priori,  $\gamma_c$  et  $\gamma_0$  sont des fonctions de la vitesse  $\vec{v}$ , ce qui fait que la matrice densité  $\tilde{\sigma}_g$  dépend de  $\vec{v}$  non seulement par l'intermédiaire des fréquences  $\Omega_1$  et  $\Omega_2$ , mais également par l'intermédiaire du taux de relaxation  $\gamma$ .

---

(\*) Dans les conditions expérimentales où nous nous sommes placés ( $p \geq 10$  mtorr et faisceaux de pompage étendus), on a :

$$\gamma_c \gg \gamma_0$$

La description utilisée jusqu'ici serait suffisante si les collisions détruisaient totalement les observables créées par le pompage. Ceci est bien évidemment faux pour la population ; c'est faux également pour l'orientation et l'alignement dans les collisions  $\text{Ne}^{\star} - \text{He}$ , et dans une moindre mesure dans les collisions  $\text{Ne}^{\star} - \text{Ne}$ , comme le montrent différentes expériences de pompage optique sélectif en vitesses (cf. chap. B § I, ainsi que [34] et [41]).

Il convient donc d'ajouter au terme de relaxation écrit précédemment, qui est un "terme de départ", un "terme de retour" correspondant aux observables ramenées par collisions à partir des autres classes de vitesses vers la classe de vitesse considérée. Ce terme supplémentaire, introduit phénoménologiquement dans [41], fait intervenir un noyau de collisions de la forme :

$$K^{(k)}(\vec{v}, \vec{v}') = P(\vec{v}, \vec{v}') \xi^{(k)}(\vec{v}, \vec{v}')$$

$P(\vec{v}, \vec{v}')$  est la probabilité par unité de temps pour qu'un atome soit transféré par collision de la vitesse  $\vec{v}$  à la vitesse  $\vec{v}'$  ;

$\xi^{(k)}(\vec{v}, \vec{v}')$  est le paramètre de conservation de l'observable considérée lors de la collision ; il dépend de l'ordre tensoriel  $k$  de cette observable ; on a toujours :

$$0 \leq \xi \leq 1$$

¶ Nous admettrons que, pour une classe d'atomes de vitesse  $\vec{v}$  donnée, le taux de relaxation par collisions des différentes observables, n'est rien d'autre que le taux de départ de la population :

$$\gamma_c(\vec{v}) = \iiint_{-\infty}^{+\infty} d^2v' P(\vec{v}, \vec{v}')$$

Ceci revient à dire qu'une collision qui change l'orientation ou l'alignement des atomes, change également leur vitesse :  $\gamma_c$  comme  $\gamma_0$  sont indépendants de  $k$ .

$\gamma(\vec{v})$  étant une fonction qui ne varie pas très rapidement avec la vitesse, nous l'approximerons dans la suite à une constante.

Comme dans la référence [41], nous écrirons donc l'évolution de l'opérateur densité sous l'effet des collisions sous la forme :

$$\left. \frac{d \sigma_g(\vec{v})}{dt} \right|_{\text{coll.}} = -\gamma \sigma_g(\vec{v}) + \iint_{-\infty}^{+\infty} d^2v' \sum_{k,q} K^{(k)}(\vec{v}', \vec{v}) \sigma_{gq}^{(k)}(\vec{v}) T_q^{(k)} \quad (2-1)$$

où nous avons négligé tous les couplages par collision entre observables de symétries différentes ( $k \neq k'$  ou  $q \neq q'$ ).

$\vec{v}$  et  $\vec{v}'$  sont des vecteurs vitesses à deux dimensions dans le plan  $zOx$ , la composante  $v_y$  ne jouant aucun rôle dans notre problème.

## 2 - CALCUL DE ${}^{(2)}\tilde{\sigma}_g$

On peut reprendre, avec ce nouveau terme d'évolution, le calcul des effets de pompage croisés à l'ordre le plus bas, dans l'opérateur densité  $\tilde{\sigma}_g$ .

A l'ordre 1 en intensité cet opérateur densité, que nous noterons  ${}^{(1)}\tilde{\sigma}_g(\vec{v})$  pour une classe de vitesse  $\vec{v}$  donnée, peut être développé en série par rapport au nombre de collisions  $n$  subies par l'atome après un premier cycle de pompage :

$${}^{(1)}\tilde{\sigma}_g(\vec{v}) = \sum_{n=0}^{\infty} {}^{(1)}\tilde{\sigma}_g^{(n)}(\vec{v})$$

Il en est de même pour les composantes  ${}^{(1)}\sigma_{gq}^{(k)}$  correspondantes :

$${}^{(1)}\sigma_{gq}^{(k)}(\vec{v}) = \sum_{n=0}^{\infty} {}^{(1)}\sigma_{gq}^{(k)(n)}(\vec{v})$$

On peut résoudre les équations d'évolution de  ${}^{(1)}\tilde{\sigma}_g(\vec{v})$  par itération par rapport à  $n$  (on suppose que les collisions n'ont pas le temps de se produire pendant la durée de vie de l'état excité). On obtient, en se limitant à un cycle de pompage optique par le faisceau 1 :

$${}^{(1)}\sigma_{gq_1}^{(k_1)}(\vec{v}) = \frac{\Gamma_1(\vec{v})}{2J_g + 1} \frac{\mathcal{B}_{k_1}(J_g, J_e) \phi_{q_1}^{(k_1)}(\vec{e}_{\lambda_1})}{i q_1 \omega_g + \gamma} \quad (2-2)$$

expression qui a déjà été calculée dans II.3.b.

$$\text{et } {}^{(1)}\sigma_{gq_1}^{(k_1)}(\vec{v}) = \iint_{-\infty}^{+\infty} d^2v' \frac{K^{(k_1)}(\vec{v}', \vec{v}) {}^{(1)}\sigma_{gq_1}^{(k_1)}(\vec{v}')}{i q_1 \omega_g + \gamma} \quad (2-3)$$

Pour obtenir l'opérateur densité à l'ordre 2 en intensité, que nous noterons  ${}^{(2)}\overset{\sim}{\sigma}_g(\vec{v})$ , on reporte l'expression totale de  ${}^{(1)}\overset{\sim}{\sigma}_g(\vec{v})$  dans l'équation d'évolution de  ${}^{(2)}\overset{\sim}{\sigma}_g(\vec{v})$ . Comme précédemment, il est commode de développer  ${}^{(2)}\overset{\sim}{\sigma}_g(\vec{v})$  en série par rapport au nombre de collisions  $p$  subies par l'atome après le deuxième cycle de pompage optique :

$${}^{(2)}\overset{\sim}{\sigma}_g(\vec{v}) = \sum_{p=0}^{\infty} {}^{(2)}\overset{\sim}{\sigma}_g^{(p)}(\vec{v})$$

et

$${}^{(2)}\sigma_{gQ}^{(K)}(\vec{v}) = \sum_{p=0}^{\infty} {}^{(2)}\sigma_{gQ}^{(K)(p)}(\vec{v})$$

L'équation d'évolution de  ${}^{(2)}\overset{\sim}{\sigma}_g(\vec{v})$  peut alors être résolue par itération ; nous nous limiterons aux termes de pompage croisés dus à l'action du faisceau 1 puis à celle du faisceau 2. On obtient :

$${}^{(2)}\sigma_{gQ}^{(K)}(\vec{v}) = \frac{\Gamma'_2}{iQ\omega_g + \gamma} \sum_{\substack{k_1 q_1 \\ k_2 q_2}} C_p(k_1, k_2, K) \phi_{q_2}^{(k_2)}(\vec{e}_{\lambda_2}) {}^{(1)}\sigma_{gq_1}^{(k_1)}(\vec{v}) \langle k_1 k_2 q_1 q_2 | KQ \rangle \quad (2-4)$$

pour les termes de "pompage-pompage",

$${}^{(2)}\sigma_{gQ}^{(K)}(\vec{v}) = - \frac{2i \Delta E'_2}{iQ\omega_g + \gamma} \sum_{\substack{k_1 q_1 \\ k_2 q_2}} C_d(k_1, k_2, K) \phi_{q_2}^{(k_2)}(\vec{e}_{\lambda_2}) {}^{(1)}\sigma_{gq_1}^{(k_1)}(\vec{v}) \langle k_1 k_2 q_1 q_2 | KQ \rangle \quad (2-5)$$

pour les termes de "pompage-déplacement",

$$\text{et} \quad {}^{(2)}\sigma_{gQ}^{(K)}(\vec{v}) = \iint_{-\infty}^{+\infty} d^2v' \frac{K^{(K)}(\vec{v}', \vec{v}) {}^{(2)}\sigma_{gQ}^{(K)}(\vec{v}')}{iQ\omega_g + \gamma} \quad (2-6)$$

Chacun des  ${}^{(2)}\sigma_{gQ}^{(K)(p)}(\vec{v})$  est, par l'intermédiaire de  ${}^{(1)}\sigma_{gq_1}^{(k_1)}$ , une somme sur  $n$  ;  ${}^{(2)}\sigma_{gQ}^{(K)}$  se présente donc comme une double somme sur  $n$  et sur  $p$  de termes croisés  ${}^{(2)}\sigma_{n,p}^{(K)}(\vec{v})$  correspondant à un cycle de pompage par le faisceau 1 suivi de  $n$  collisions, puis un cycle de pompage par le faisceau 2 suivi de  $p$  collisions. Chacun de ces termes croisés donne lieu à un signal, lorsqu'on détecte une observable proportionnelle à  $T_Q^{(K)}$ , qui est, après intégration sur toutes les classes de vitesse, de la forme :

$$S(\delta) \propto \iint_{-\infty}^{+\infty} d^2v \mathcal{D}(\delta, \vec{v}) \sigma_{n,p}^{(2)} \sigma_Q^{(K)}(\delta, \vec{v})$$

$$\delta = \Omega_L - \Omega_0$$

$$\text{et } \mathcal{D}(\delta, \vec{v}) = \frac{\Gamma_{eg}}{(\delta - \vec{k}_d \cdot \vec{v})^2 + \Gamma_{eg}^2} \quad \text{est la fonction de détection.}$$

### 3 - COMPORTEMENT EN FREQUENCE DES SIGNAUX INDUITS PAR LES COLLISIONS

Dans chacun des termes  $\sigma_{n,p}^{(2)} \sigma_Q^{(K)}(\delta, \vec{v})$  la dépendance en vitesse et en fréquence provient uniquement des coefficients  $\Gamma'(\delta, \vec{v})$  et  $\Delta E'(\delta, \vec{v})$  ainsi que des intégrales de collisions. Nous allons montrer que ces dernières ne modifient pas la symétrie, par rapport à  $\delta$ , du signal détecté.

Prenons l'exemple d'un signal de "pompage-déplacement". A l'ordre 1 en intensité, et en l'absence de collisions, la dépendance en  $\delta$  et  $\vec{v}$  de  $\sigma_{g, q_1}^{(1)}(k_1)$  est celle de  $\Gamma'_1$ . On a donc :

$$\sigma_{0, g, q_1}^{(1)}(k_1)(-\delta, -\vec{v}) = \sigma_{0, g, q_1}^{(1)}(k_1)(\delta, \vec{v})$$

Pour le terme à 1 collision :

$$\begin{aligned} \sigma_{1, g, q_1}^{(1)}(k_1)(-\delta, -\vec{v}) &= \iint_{-\infty}^{+\infty} d^2(-v') \frac{K^{(k_1)}(-\vec{v}', -\vec{v}) \sigma_{0, g, q_1}^{(1)}(k_1)(-\delta, -\vec{v})}{i q_1 \omega_g + \gamma} \\ &= \iint_{-\infty}^{+\infty} d^2v' \frac{K^{(k_1)}(-\vec{v}', -\vec{v}) \sigma_{0, g, q_1}^{(1)}(k_1)(\delta, \vec{v})}{i q_1 \omega_g + \gamma} \end{aligned}$$

Le noyau de collision  $K^{(k_1)}(-\vec{v}', -\vec{v})$  est égal à  $K^{(k_1)}(\vec{v}', \vec{v})$  (rotation de  $\pi$  dans le plan  $zOx$ ). On voit donc que :

$$\sigma_{1, g, q_1}^{(1)}(k_1)(-\delta, -\vec{v}) = \sigma_{1, g, q_1}^{(1)}(k_1)(\delta, \vec{v})$$

et ce résultat se généralise immédiatement à  $n$  quelconque, de sorte que :

$$\sigma_{q_1}^{(1)}(k_1)(-\delta, -\vec{v}) = \sigma_{q_1}^{(1)}(k_1)(\delta, \vec{v})$$

Au deuxième ordre en intensité, et pour un signal de "pompage-déplacement", on a :

$${}_{0}^{(2)}\sigma_{gQ}^{(K)}(-\delta, -\vec{v}) = - {}_{0}^{(2)}\sigma_{gQ}^{(K)}(\delta, \vec{v})$$

puisque  $\Delta E'(-\delta, -\vec{v}) = -\Delta E'(\delta, \vec{v})$

et ce résultat se généralise à tous les ordres en  $p$ , par un raisonnement identique à celui que nous venons de faire.

Le signal détecté vérifie donc :

$$S(-\delta) = \iiint_{-\infty}^{+\infty} d^2v \mathcal{D}(-\delta, -\vec{v}) {}_{n,p}^{(2)}\sigma_{gQ}^{(K)}(-\delta, -\vec{v}) = -S(\delta)$$

puisque la fonction  $\mathcal{D}$  est invariante quand on change  $\delta$  en  $-\delta$  et  $\vec{v}$  en  $-\vec{v}$ .

En résumé, nous avons montré que les signaux induits par les collisions qui conservent partiellement les observables créées par le pompage, ont la même parité par rapport à  $\delta = \Omega_L - \Omega_0$ , que ceux qu'on obtient en l'absence de collisions. Ils sont donc pairs pour des signaux de "pompage-pompage", et impairs pour des signaux de "pompage-déplacement". Bien entendu, leur profil est plus large que celui qu'on obtiendrait sans collisions, et il dépend de la forme du noyau ; cette dépendance est discutée dans [41] pour le pompage optique sélectif en vitesses par un seul faisceau.

¶

#### 4 - DEPENDANCE EN CHAMP MAGNETIQUE ; EXEMPLE SIMPLE

Pour montrer comment la dépendance en champ magnétique des signaux induits par les collisions peut être calculée à partir des expressions écrites ci-dessus, nous allons choisir l'exemple de l'orientation longitudinale créée par un effet croisé de "pompage-déplacement" à partir de deux orientations (premier effet du tableau 5).

En l'absence de collisions, cet effet, qui provient de deux termes d'amplitudes égales en  $[T_{-1}^{(1)}, T_1^{(1)}]$  et  $[T_1^{(1)}, T_{-1}^{(1)}]$ , a pour dépendance en champ magnétique (cf. II.3.c) :

$$i \left( \frac{1}{\gamma + i\omega_g} - \frac{1}{\gamma - i\omega_g} \right) = \frac{2\omega_g}{\gamma^2 + \omega_g^2}$$

$$S(\delta) \propto \iint_{-\infty}^{+\infty} d^2v \mathcal{D}(\delta, \vec{v}) \frac{{}^{(2)}\sigma_{n,p}^{(K)}(\delta, \vec{v})}{{}^{(2)}\sigma_Q^{(K)}(\delta, \vec{v})}$$

$$\delta = \Omega_L - \Omega_0$$

$$\text{et } \mathcal{D}(\delta, \vec{v}) = \frac{\Gamma_{eg}}{(\delta - \vec{k}_d \cdot \vec{v})^2 + \Gamma_{eg}^2} \text{ est la fonction de détection.}$$

### 3 - COMPORTEMENT EN FREQUENCE DES SIGNAUX INDUITS PAR LES COLLISIONS

Dans chacun des termes  $\frac{{}^{(2)}\sigma_{n,p}^{(K)}(\delta, \vec{v})}{{}^{(2)}\sigma_Q^{(K)}(\delta, \vec{v})}$  la dépendance en vitesse et en fréquence provient uniquement des coefficients  $\Gamma'(\delta, \vec{v})$  et  $\Delta E'(\delta, \vec{v})$  ainsi que des intégrales de collisions. Nous allons montrer que ces dernières ne modifient pas la symétrie, par rapport à  $\delta$ , du signal détecté.

Prenons l'exemple d'un signal de "pompage-déplacement". A l'ordre 1 en intensité, et en l'absence de collisions, la dépendance en  $\delta$  et  $\vec{v}$  de  ${}^{(1)}\sigma_{g, q_1}^{(k_1)}$  est celle de  $\Gamma'_1$ . On a donc :

$${}^{(1)}\sigma_{g, q_1}^{(k_1)}(-\delta, -\vec{v}) = {}^{(1)}\sigma_{g, q_1}^{(k_1)}(\delta, \vec{v})$$

Pour le terme à 1 collision :

$$\begin{aligned} {}^{(1)}\sigma_{g, q_1}^{(k_1)}(-\delta, -\vec{v}) &= \iint_{-\infty}^{+\infty} d^2(-v') \frac{K^{(k_1)}(-\vec{v}', -\vec{v}) {}^{(1)}\sigma_{g, q_1}^{(k_1)}(-\delta, -\vec{v})}{i q_1 \omega_g + \gamma} \\ &= \iint_{-\infty}^{+\infty} d^2v' \frac{K^{(k_1)}(-\vec{v}', -\vec{v}) {}^{(1)}\sigma_{g, q_1}^{(k_1)}(\delta, \vec{v})}{i q_1 \omega_g + \gamma} \end{aligned}$$

Le noyau de collision  $K^{(k_1)}(-\vec{v}', -\vec{v})$  est égal à  $K^{(k_1)}(\vec{v}', \vec{v})$  (rotation de  $\pi$  dans le plan  $zOx$ ). On voit donc que :

$${}^{(1)}\sigma_{g, q_1}^{(k_1)}(-\delta, -\vec{v}) = {}^{(1)}\sigma_{g, q_1}^{(k_1)}(\delta, \vec{v})$$

et ce résultat se généralise immédiatement à  $n$  quelconque, de sorte que :

$${}^{(1)}\sigma_{q_1}^{(k_1)}(-\delta, -\vec{v}) = {}^{(1)}\sigma_{q_1}^{(k_1)}(\delta, \vec{v})$$



Au deuxième ordre en intensité, et pour un signal de "pompage-déplacement", on a :

$${}^{(2)}\sigma_{g Q}^{(K)}(-\delta, -\vec{v}) = - {}^{(2)}\sigma_{g Q}^{(K)}(\delta, \vec{v})$$

puisque  $\Delta E'(-\delta, -\vec{v}) = - \Delta E'(\delta, \vec{v})$

et ce résultat se généralise à tous les ordres en  $p$ , par un raisonnement identique à celui que nous venons de faire.

Le signal détecté vérifie donc :

$$S(-\delta) = \iint_{-\infty}^{+\infty} d^2v \mathcal{D}(-\delta, -\vec{v}) {}^{(2)}\sigma_{g Q}^{(K)}(-\delta, -\vec{v}) = - S(\delta)$$

puisque la fonction  $\mathcal{D}$  est invariante quand on change  $\delta$  en  $-\delta$  et  $\vec{v}$  en  $-\vec{v}$ .

En résumé, nous avons montré que les signaux induits par les collisions qui conservent partiellement les observables créées par le pompage, ont la même parité par rapport à  $\delta = \Omega_L - \Omega_0$ , que ceux qu'on obtient en l'absence de collisions. Ils sont donc pairs pour des signaux de "pompage-pompage", et impairs pour des signaux de "pompage-déplacement". Bien entendu, leur profil est plus large que celui qu'on obtiendrait sans collisions, et il dépend de la forme du noyau ; cette dépendance est discutée dans [41] pour le pompage optique sélectif en vitesses par un seul faisceau.

#### 4 - DEPENDANCE EN CHAMP MAGNETIQUE ; EXEMPLE SIMPLE

Pour montrer comment la dépendance en champ magnétique des signaux induits par les collisions peut être calculée à partir des expressions écrites ci-dessus, nous allons choisir l'exemple de l'orientation longitudinale créée par un effet croisé de "pompage-déplacement" à partir de deux orientations (premier effet du tableau 5).

En l'absence de collisions, cet effet, qui provient de deux termes d'amplitudes égales en  $[T_{-1}^{(1)}, T_1^{(1)}]$  et  $[T_1^{(1)}, T_{-1}^{(1)}]$ , a pour dépendance en champ magnétique (cf. II.3.c) :

$$i \left( \frac{1}{\gamma + i \omega_g} - \frac{1}{\gamma - i \omega_g} \right) = \frac{2\omega_g}{\gamma^2 + \omega_g^2}$$

Les deux termes dans la parenthèse correspondent aux dépendances en champ magnétique des orientations transversales  $T_1^{(1)}$  et  $T_{-1}^{(1)}$  créées de façon intermédiaire par le premier cycle de pompage optique.

Intéressons-nous maintenant au terme à une collision dans cet effet ( $n + p = 1$ ). Deux cas sont à envisager :

• Si la collision a lieu après le deuxième cycle de pompage ( $p = 1$ ) : non seulement la dépendance en champ magnétique des termes intermédiaires  $^{(1)}\sigma_{g \pm 1}^{(1)}$  est inchangée puisque  $n = 0$ , mais de plus celle de  $^{(2)}\sigma_{g 0}^{(1)}$  l'est également puisque l'observable obtenue après le deuxième cycle de pompage est longitudinale et n'évolue pas dans le champ magnétique ( $Q = 0$ ). Finalement, la dépendance en champ est la même que sans collisions (ce résultat se généralise immédiatement à  $p$  quelconque pourvu que  $n = 0$ ).

• Si la collision a lieu entre les deux cycles de pompage ( $n = 1$ ), les termes intermédiaires  $^{(1)}\sigma_{g \pm 1}^{(1)}$  varient maintenant comme  $\frac{1}{(\gamma \pm i \omega_g)^2}$  et l'effet au deuxième ordre a donc pour dépendance en champ :

$$i \left[ \frac{1}{(\gamma + i \omega_g)^2} - \frac{1}{(\gamma - i \omega_g)^2} \right] = \frac{4 \gamma \omega_g}{(\gamma^2 + \omega_g^2)^2}$$

Il s'agit toujours d'une fonction impaire en champ magnétique, mais qui est plus étroite que la précédente. Pour la même raison que plus haut, on aurait trouvé la même dépendance pour  $n = 1$  et  $p$  quelconque.

Un calcul analogue peut être fait pour un nombre total de collisions plus grand que 1. Dans le cas considéré, seul intervient  $n$ , et la dépendance en champ magnétique est :

$$i \left[ \frac{1}{(\gamma + i \omega_g)^{n+1}} - \frac{1}{(\gamma - i \omega_g)^{n+1}} \right]$$

Le cas choisi est particulièrement simple car la grandeur créée après deux cycles de pompage est longitudinale : elle n'évolue pas dans le champ magnétique et seules les collisions ayant lieu entre les deux cycles de pompage interviennent dans la dépendance en champ magnétique. De plus, cette dépendance s'écrit simplement car l'effet n'est la somme que de deux termes correspondant à  $q = \pm 1$ .

REFERENCES

- [1] J. BROSSEL - "Pompage optique", dans *Optique et Electronique Quantique*, Les Houches 1964, Gordon and Breach.
- [2] C. COHEN-TANNOUJDI et A. KASTLER - *Progress in Optics*, vol.5 (1966).
- [3] W. HAPPER - *Review of Modern Physics* 44, 169 (1972).
- [4] "Dye Lasers", *Topics in Applied Physics*, F.P. SCHAFER Ed., Springer Verlag 1973.
- [5] D.R. BATES - *Planet.Space Sci.* 26, 897 (1978).
- [6] R.A. YOUNG - *Scientific American*, March 1966, p. 102.
- [7] C.E. JOHNSON - *Phys. Rev. A* 5, 2688 (1972).
- [8] W.C. WELLS et E.C. ZIPF - *Phys. Rev. A* 9, 568 (1974).
- [9] G. NOWAK, W.L. BORST et J. FRICKE - *Phys. Rev. A* 17, 1921 (1978).
- [10] C.A. NICOLAIDES - *Chem. Phys. Lett.* 17, 436 (1972).
- [11] A.K. PRADHAN et H.E. SARAPH - *J. Phys. B* 10, 3365 (1977).
- [12] H.H. VOIGT - *Z. Astrophys.* 40, 157 (1956).
- [13] P.W. MERRIL - *Publ. Astron. Soc. Pacific* 37, 272 (1925).
- [14] K. ERIKSSON et S.C. TOFT - *Astron. Astrophys.* 71, 178 (1979).
- [15] G.O. BRINK - *J. Chem. Phys. Lett.* 46, 4531 (1967).
- [16] W.L. BORST et E.C. ZIPF - *Phys. Rev. A* 4, 153 (1971).
- [17] R.S. FREUND - *J. Chem. Phys.* 54, 3225 (1971).
- [18] N. GONZALEZ FLESCA - Thèse d'Etat, Paris (1981).
- [19] T. INCESU, A. HUQ et H.A. SHUGART - *Phys. Rev. A* 18, 797 (1978).
- [20] E.P. RÖTH, D. PERNER et J.W. DREYER - *Z. Naturforsch* 28a, 725 (1973).
- [21] H.U. KIEFL, W.L. BORST et J. FRICKE - *Phys. Rev. A* 21, 518 (1980).
- [22] P.H. DICKINSON, W.C. BAIN, L. THOMAS, E.R. WILLIAMS, D.B. JENKINS et N.D. TWIDDY - *Proc. R. Soc. London A* 369, 379 (1980).

- [23] L. THOMAS, R.G.H. GREER et P.H. DICKINSON - Planet.Space Sci. 27, 925 (1979).
- [24] L.A. RISEBERG et L.D. SCHEARER - Phys. Lett. 35 A, 269 (1971).
- [25] L.D. SCHEARER - Phys. Rev. A 10, 1380 (1974).
- [26] J. HAMMEL et J.P. BARRAT - Opt. Comm. 10, 331 (1974).
- [27] R. BARBE, F. LALOË et M. LEDUC - C.R. Acad. Sci., Paris 274, 465 (1972).
- [28] L.D. SCHEARER - Phys. Rev. 180, 83 (1969).
- [29] M. LEDUC - Thèse d'Etat, Paris (1972).
- [30] J. DUPONT-ROC - Thèse d'Etat, Paris (1972).
- [31] J. DUPONT-ROC, M. LEDUC et F. LALOË - Phys. Rev. Lett. 27, 467 (1971).
- [32] C. COHEN-TANNOUDJI et F. LALOË - J. Phys. 28, 505 et 722 (1967).
- [33] F. LALOË - Ann. Phys., Paris 6, 5 (1970).
- [34] M. PINARD, C.G. AMINOFF et F. LALOË - Phys. Rev. A 19, 2366 (1979).  
M. PINARD - Thèse d'Etat, Paris (1980).
- [35] L. JULIEN, J.P. DESCOUBES et F. LALOË - J. Phys. B 12, L769 (1979).
- [36] Voir par exemple V.S. LETOKHOV et V.P. CHEBOTAIEV - Non-Linear Laser Spectroscopy, Springer Verlag, Berlin 1977.
- [37] C. COHEN-TANNOUDJI - dans les Houches 1975 - , Frontiers in Laser Spectroscopy, Vol. 1, édité par R. BALIAN, S. HAROCHE et S. LIBERMAN (North-Holland, Amsterdam 1977) p. 3.
- [38] J.P. BARRAT et C. COHEN-TANNOUDJI - J. Phys. Rad. 22, 329 et 443 (1961).
- [39] C. COHEN-TANNOUDJI - dans Atomic Physics 4 , édité par G. ZU PUTLITZ, E.W. WEBER et A. WINNACKER (Plenum Press, New-York 1975) p. 589.
- [40] M. PINARD, C.G. AMINOFF et F. LALOË - Appl. Phys. 15, 371 (1978).
- [41] C.G. AMINOFF et M. PINARD - soumis à J. Phys.
- [42] A.P. KOLCHENKO, A.A. PUKHOV, S.G. RAUTIAN et A.M. SHALAGIN - Sov. Phys. J.E.T.P. 36, 619 (1973).
- [43] P.R. BERMAN - Phys. Rev. A 13, 2191 (1976).
- [44] C. BRECHIGNAC, R. VETTER et P.R. BERMAN - Phys. Rev. A 17, 1609 (1978).
- [45] M. GORLICKI, A. PEURIOT et M. DUMONT - J. Phys. Lettres 41, L-275 (1980).

- [46] J.P. GRANDIN, D. HENNECART, X. HUSSON, D. LECLERC, J.F. VIENNE et M. BARRAT-RAMBOSSON - J. Phys. 36, 787 (1975).
- [47] L. JULIEN, M. PINARD et F. LALOË - J. Phys. Lettres 41, L479 (1980).
- [48] G.M. GROSOFF, P. BUCK, W. LICHTEN et I.I. RABI - Phys. Rev. Lett. 1, 214 (1958).
- [49] E. GIACOBINO - J. Phys. Lettres 36, L65 (1975).  
E. GIACOBINO - Thèse d'Etat, Paris (1976).
- [50] X. HUSSON et J.P. GRANDIN - J. Phys. B 11, 1393 (1978).
- [51] C. DELSART et J.C. KELLER - Opt. Comm. 16, 388 (1976).
- [52] K. BEROFF - Thèse de 3ème cycle, Paris (1978).
- [53] D. HENNECART et M. BARRAT-RAMBOSSON - J. Phys. 38, 133 (1977).
- [54] C. BAUCHE-ARNOULT et J. BAUCHE - Ann. Phys. 3, 341 (1968).
- [55] S. LIBERMAN - Physica 69, 598 (1973).
- [56] X. HUSSON et J.P. GRANDIN - communication privée.
- [57] V.R. ODINTSOV - Opt. Spectrosc. 28, 205 (1965).
- [58] R.J. CHAMPEAU et J.C. KELLER - J. Phys. B 6, L76 (1973).
- [59] C. COHEN-TANNOUDJI et J. DUPONT-ROC - Phys. Rev. A 5, 968 (1972).
- [60] L. JULIEN, M. PINARD et F. LALOË - Phys. Rev. Lett. 47, 564 (1981).
- [61] M. DUCLOY - Thèse de 3ème cycle, Paris (1968).
- [62] U. FANO et G. RACAH - "Irreducible Tensorial Sets", Academic Press Inc. , New York (1959).
- [63] A. OMONT - Prog. Quantum Electronica 5, 69 (1977).
- [64] F. LALOË, M. LEDUC et P. MINGUZZI - J. Phys. 30, 277 et 341 (1969).
- [65] J.P. FAROUX - Thèse d'Etat, Paris (1969).
- [66] A. MESSIAH - "Mécanique Quantique" tome II, Ed. Dunod, Paris (1959).
- [67] A.R. EDMONDS - "Angular Momentum in Quantum Mechanics", Princeton (1957).
- [68] M. LOMBARDI - J. Phys. 30, 631 (1969).
- [69] C. COHEN-TANNOUDJI et J. DUPONT-ROC - Optics Comm. 1, 184 (1969).
- [70] M.G. DROUET et J.P. NOVAK - Physics Letters 34A, 199 (1971).

- [71] F.M. PENNING - Physica 8, 137 (1928).
- [72] R.B. GREEN, R.A. KELLER, G.G. LUTHER, P.K. SCHENCK et J.C. TRAVIS - Appl. Phys. Lett. 29, 727 (1976).
- [73] W.B. BRIDGES - J. Opt. Soc. Am. 68, 352 (1978) et références citées.
- [74] M.A. NIPPOLDT et R. GREEN - Applied Optics 20, 3206 (1981).
- [75] T. SUZUKI - Optics Comm. 38, 364 (1981).
- [76] J.E. LAWLER, A.I. FERGUSON, J.E.M. GOLDSMITH, D.J. JACKSON et A.L. SCHAWLOW - Phys. Rev. Lett. 42, 1046 (1979).
- [77] D.J. JACKSON, H. GEHRARDT et T.W. HÄNSH - Optics Comm. 37, 23 (1981).
- [78] J.E.M. GOLDSMITH, A.I. FERGUSON, J.E. LAWLER et A.L. SCHAWLOW - Optics Letters 4, 230 (1979).
- [79] K.C. SMYTH et P.K. SCHENCK - Chem. Phys. Lett. 55, 466 (1978).
- [80] E.F. ZALEWSKI, R.A. KELLER et R. ENGLEMAN - J. Chem. Phys. 70, 1015 (1979).
- [81] J.E. LAWLER - Phys. Rev. A 22, 1025 (1980).
- [82] K.C. SMYTH, R.A. KELLER et F.F. CRIM - Chem. Phys. Lett. 55, 473 (1978).
- [83] S.P. KRAVIS et S.C. HAYDON - J. Phys. D 14, 151 (1981).
- [84] J.P. GRANDIN et X. HUSSON - J. Phys. B 14, 433 (1981).
- [85] L.D. SCHEARER et L.A. RISEBERG - Physics Letters 33A, 325 (1970).
- [86] B.N. SEVAST'YANOV et R.A. ZHITNIKOV - Sov. Phys. JETP 29, 809 (1969).  
R.A. ZHITNIKOV, E.V. BLINOV et L.S. VLASENKO - Sov. Phys. JETP 37, 53 (1973).
- [87] J.C. HILL, L.L. HATFIELD, N.D. STOCKWELL et G.K. WALTERS - Phys. Rev. A 5, 189 (1972).
- [88] T.W. HÄNSH, D.R. LYONS, A.L. SCHAWLOW, A. SIEGEL, Z.Y. WANG et G.Y. YAN - Optics Comm. 37, 87 (1981).
- [89] D.R. LYONS, A.L. SCHAWLOW et G.Y. YAN - Optics Comm. 38, 35 (1981).
- [90] G.W. SERIES - Comments Atom. Mol. Phys. 10, 199 (1981).
- [91] J.C. PEBAY-PEROULA - Thèse d'Etat, Paris (1959).  
J.C. PEBAY-PEROULA - J. Phys. Rad. 20, 669 et 721 (1959).
- [92] M. LOMBARDI - Thèse d'Etat, Grenoble (1969).

