

## CHAPITRE V

### METHODES DE DETECTION OPTIQUE DES GRANDEURS ATOMIQUES

---

Dans les chapitres précédents, nous avons calculé la matrice densité représentant les atomes excités par le faisceau laser. Nous devons maintenant en déduire les propriétés de la lumière de fluorescence émise par les atomes : en effet, c'est l'étude expérimentale de cette lumière de fluorescence qui nous permet d'obtenir des informations sur l'état des atomes.

Dans le paragraphe A, nous donnerons l'expression générale de la lumière détectée en fonction de l'état des atomes et de la polarisation choisie pour la détection. En vue du choix de la géométrie du montage expérimental, nous donnerons au paragraphe B les formules permettant de calculer le vecteur polarisation de la lumière détectée (ou excitatrice) en fonction de la direction de propagation de la lumière et de l'analyseur (ou polariseur) choisi.

Grâce aux formules ainsi obtenues, nous chercherons à déterminer, aux paragraphes C et D, les géométries expérimentales les plus commodes. Notre but est double : d'abord, nous voulons vérifier les résultats découlant de la théorie du pompage optique laser et des hypothèses faites sur la relaxation. Pour cela, il est intéressant de trouver des montages permettant de détecter séparément chacune des observables tensorielles atomiques  $\alpha_{\mathbf{q}}^k$ , quel que soit le mécanisme utilisé pour les créer. Pour atteindre ce premier but, il est évident que nous ne pouvons jouer que sur le choix de la détection.

Le deuxième but recherché est la mesure des temps de relaxation. Cette mesure suppose que nous soyons sûrs de l'effet du pompage optique, c'est-à-dire des calculs des chapitres précédents. Ceci étant admis, nous sommes alors libres de choisir la géométrie de la détection, mais aussi de l'excitation, de façon à obtenir les signaux les plus commodes à étudier et les mesures les plus précises possibles.

Dans ce second point de vue, signalons tout de suite une nouvelle méthode de mesure basée sur la modulation de la polarisation du faisceau de pompage. Cette méthode, inutilisable pour le pompage optique classique des niveaux fondamentaux (temps de relaxation trop longs), est une des possibilités intéressantes du pompage optique des niveaux excités par un faisceau laser.

## A - EXPRESSION GENERALE DE LA LUMIERE DE FLUORESCENCE

La lumière de fluorescence émise par des atomes excités est calculée dans de nombreux ouvrages avec différents formalismes. Nous utiliserons ici, comme point de départ, l'expression obtenue par COHEN-TANNOUJDI dans le formalisme de la matrice densité (réf. (3), formule III-B-1 généralisée pour un vecteur polarisation  $\vec{\lambda}$  complexe).

Nous considérerons ici la transition optique  $b \rightarrow g$  issue du niveau à étudier,  $b$ , et aboutissant à un niveau inférieur  $g$ . L'intensité lumineuse émise dans un angle solide  $d\Omega$  autour de la direction  $\vec{k}_F$ , avec la polarisation  $\vec{\lambda}$  ( $\vec{\lambda} \perp \vec{k}_F$ ) s'écrit alors :

$$\begin{aligned} \frac{dI_{bg}(\vec{\lambda})}{d\Omega} &= L_{bg}(\vec{\lambda}) = \frac{3\gamma_{bg}}{8\pi} \sum_{M_b M'_b M_g} \rho_{M_b M'_b} \langle M'_b | \vec{\lambda} \cdot \vec{D} | M_g \rangle \langle M_g | \vec{\lambda}^* \cdot \vec{D} | M_b \rangle \\ &= \frac{3\gamma_{bg}}{8\pi} \text{Tr} \{ \rho_{bg}(\vec{\lambda}, \vec{D}) (\vec{\lambda}^* \cdot \vec{D}) \} \end{aligned} \quad (1)$$

$\vec{D}$  est la partie angulaire de l'opérateur dipôle électrique  $\vec{P}$ , définie à l'appendice A.  $\rho_{bg}^D$  n'a d'éléments de matrice qu'entre les niveaux  $b$  et  $g$ .

$\gamma_{bg}$  est la probabilité par unité de temps de la transition  $b \rightarrow g$ .  $\gamma_{bg}$  est proportionnel à  $|P_{bg}|^2$ .

Dans l'expression (1), nous pouvons exprimer  $\lambda$  et  $\vec{D}$  en fonction de leurs composantes standard et décomposer  $\rho$  en opérateurs tensoriels irréductibles. A l'aide des formules de l'appendice A, on obtient :

$$\begin{aligned} L_{bg}(\vec{\lambda}) &= \frac{3\gamma_{bg}}{8\pi} \sum_{kqpp'} \rho_{bq}^k(r, t) \text{Tr} \left[ {}_b T_q^k((-)^p \lambda_{-p} {}_b g^D_p) ((-)^{p'} (\lambda^*)_{-p'} {}_g^D_{p'}) \right] \\ &= \frac{3\gamma_{bg}}{8\pi} (2J_b + 1) \sum_{kqpp'} (-)^{J_b + J_g + p'} \rho_{bq}^k(r, t) \lambda_p \lambda_{p'}^* \cdot \langle 11p-p' | kq \rangle \begin{Bmatrix} k & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \end{aligned} \quad (2)$$

Cette formule permet de calculer directement le diagramme de rayonnement de la lumière de fluorescence dès que l'on connaît les éléments  $\rho_{bq}^k$ . Il est intéressant de remarquer que les expressions (1) et (2) ne dépendent pas explicitement de la direction d'observation  $\vec{k}_F$  : elles dépendent uniquement du vecteur polarisation  $\vec{\lambda}$  qui est assujéti à être normal à  $\vec{k}_F$ . Dans la pratique, on cherchera donc le vecteur polarisation  $\vec{\lambda}$  permettant la mesure des grandeurs désirées et on choisira parmi les directions  $\vec{k}$  perpendiculaires à  $\vec{\lambda}$  celle qui sera la plus commode expérimentalement.

Remarquons enfin qu'il se peut que le gaz ne soit pas optiquement transparent pour la raie  $b \rightarrow g$ , si le niveau  $g$  est très peuplé (niveau fondamental ou métastable). Dans ces conditions, un photon émis a une certaine probabilité d'être réabsorbé, ce qui diminue la lumière observée. (1) doit

alors être remplacé par :

$$L_{bg} = \frac{3\gamma_{bg}}{8\pi} (1 - x_{bg}) \text{Tr} \left[ {}_b\rho (\vec{\lambda} \cdot \vec{D}) (\vec{\lambda}^* \cdot \vec{D}) \right] \quad (3)$$

$x_{bg}$  est le taux de réabsorption moyen que nous avons déjà rencontré au sujet de la diffusion multiple (II,20).

Il est préférable que la réabsorption du milieu (donc  $x_{bg}$ ) reste faible pour la raie choisie. Si non, on n'observe qu'une mince couche du gaz, près de la paroi. Ceci est alors contradictoire avec un certain nombre des hypothèses de symétrie introduites au § II-A, qui ne sont applicables qu'à l'ensemble des atomes. D'autre part, lorsque l'excitation du gaz (décharge, laser) est spatialement inhomogène, le taux de réabsorption peut dépendre de la direction d'observation : il faudra donc être très prudent dans la comparaison des intensités lumineuses détectées par deux bancs d'optique différents.

#### B - DETERMINATION DU VECTEUR POLARISATION

Nous cherchons maintenant à déterminer les composantes standard du vecteur polarisation dans le cas général. Toutes les formules de ce paragraphe sont valables aussi bien pour le vecteur polarisation  $\vec{e}$  du faisceau laser que pour le vecteur polarisation  $\vec{\lambda}$  du faisceau détecté.

##### 1) Changement d'axes

L'axe de quantification Oz est toujours choisi dans la direction du champ magnétique. Les composantes standard doivent donc être définies par rapport à cet axe. Au contraire, la polarisation d'un faisceau lumineux est définie par rapport à son axe de propagation. Il y a donc lieu d'effectuer un changement d'axes.

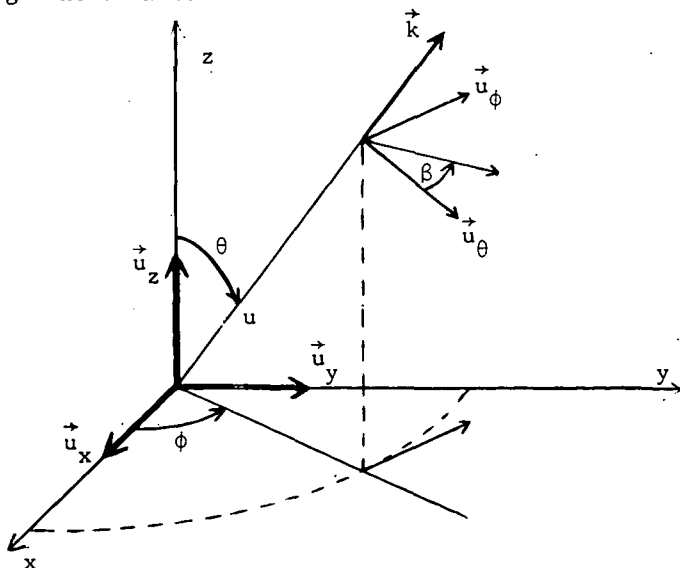


FIGURE V-1

Considérons donc un faisceau lumineux se propageant suivant la direction  $\vec{k}$  d'angles polaires  $(\theta, \phi)$ . Le vecteur polarisation est donc dans le plan  $(\vec{u}_\theta, \vec{u}_\phi)$  normal à  $\vec{k}$  ( $\vec{u}_\theta, \vec{u}_\phi, \vec{k}$  forment le trièdre local des coordonnées polaires).

Quelle que soit la polarisation du faisceau lumineux, on peut écrire (avec

$$|\lambda_\theta|^2 + |\lambda_\phi|^2 = 1) :$$

$$\begin{aligned}\vec{\lambda} &= \lambda_\theta \vec{u}_\theta + \lambda_\phi \vec{u}_\phi \\ &= (\lambda_\theta \cos\theta \cos\phi - \lambda_\phi \sin\phi) \vec{u}_x + (\lambda_\theta \cos\theta \sin\phi + \lambda_\phi \cos\phi) \vec{u}_y - \lambda_\theta \sin\theta \vec{u}_z\end{aligned}\quad (4)$$

Avec la définition (II,31) des composantes standard, on obtient :

$$\left\{ \begin{aligned}\lambda_0 &= \lambda_z = -\lambda_\theta \sin\theta \\ \lambda_{+1} &= -\frac{1}{\sqrt{2}} (\lambda_x + i\lambda_y) = \frac{-1}{\sqrt{2}} (\lambda_\theta \cos\theta + i\lambda_\phi) e^{i\phi} \\ \lambda_{-1} &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\lambda_x - i\lambda_y) = \frac{1}{\sqrt{2}} (\lambda_\theta \cos\theta - i\lambda_\phi) e^{-i\phi}\end{aligned}\right. \quad (5)$$

Cas particuliers :

Polarisation rectiligne d'angle  $\beta$  avec  $\vec{u}_\theta$  :

$$\begin{aligned}\lambda_0 &= -\cos\beta \sin\theta \\ \lambda_{\pm 1} &= \mp \frac{1}{\sqrt{2}} (\cos\beta \cos\theta \pm i \sin\beta) e^{\pm i\phi}\end{aligned}\quad (6)$$

Lumière circulaire droite :

$$\begin{aligned}\vec{\lambda}^d &= -\frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{e}_\theta + i\vec{e}_\phi) \\ \lambda_0^d &= \frac{1}{\sqrt{2}} \sin\theta & \lambda_{\pm 1}^d &= -\frac{1 \mp \cos\theta}{2} e^{\pm i\phi}\end{aligned}\quad (7)$$

Lumière circulaire gauche :

$$\begin{aligned}\vec{\lambda}^g &= +\frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{e}_\theta - i\vec{e}_\phi) \\ \lambda_0^g &= -\frac{1}{\sqrt{2}} \sin\theta & \lambda_{\pm 1}^g &= -\frac{1 \pm \cos\theta}{2} e^{\pm i\phi}\end{aligned}\quad (8)$$

## 2) Expression générale pour une combinaison Polariseur - lame biréfringente

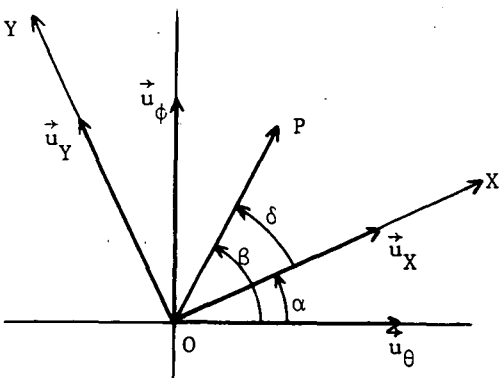


FIGURE V-2

Considérons un faisceau lumineux (faisceau excitateur) traversant d'abord un polariseur orienté suivant l'axe OP, puis une lame biréfringente qui introduit un retard de phase  $\phi$  entre l'axe lent OY et l'axe rapide OX. Les angles entre les trois axes  $u_\theta$ , OX et OP sont définis sur la figure V-2. A la sortie du polariseur le faisceau peut être décrit par le champ électrique

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = E \cos(\omega t - \vec{k}\vec{r}) (\cos \delta \vec{u}_X + \sin \delta \vec{u}_Y) \quad (9)$$

Après la lame cristalline, il devient :

$$\begin{aligned} \vec{E}(\vec{r}, t) &= E \left[ \cos \delta \cos(\omega t - \vec{k}\vec{r}) \vec{u}_X + \sin \delta \cos(\omega t - \vec{k}\vec{r} - \Phi) \vec{u}_Y \right] \\ &= \frac{E}{2} \left[ \vec{e} e^{-i(\omega t - \vec{k}\vec{r})} + \vec{e} * e^{i(\omega t - \vec{k}\vec{r})} \right] \end{aligned} \quad (10)$$

ce qui donne le vecteur polarisation :

$$\begin{aligned} \vec{e} &= \cos \delta \vec{u}_X + e^{i\Phi} \sin \delta \vec{u}_Y \\ &= (\cos \delta \cos \alpha - e^{i\Phi} \sin \delta \sin \alpha) \vec{u}_\theta + (\cos \delta \sin \alpha + e^{i\Phi} \sin \delta \cos \alpha) \vec{u}_\phi \end{aligned} \quad (11)$$

Pour la détection de la lumière de fluorescence, le problème est symétrique. Si l'on cherche, dans le faisceau émis, la composante de polarisation  $\vec{\lambda}$ , identique à celle du faisceau (10), il faudra utiliser un analyseur formé de la lame cristalline complémentaire (axe lent suivant OX, même déphasage) et d'un polariseur de même orientation.

Donc, pour calculer l'intensité lumineuse détectée derrière un analyseur quelconque, il faudra reporter dans les formules (1), (2) ou (3), un vecteur  $\vec{\lambda}$  s'exprimant suivant la formule (11), à condition d'appeler OX l'axe lent de la lame biréfringente. De (11) nous déduisons, en remplaçant  $\delta$  par  $\beta - \alpha$  :

$$\begin{aligned} \lambda_\theta &= e^{i \frac{\Phi}{2}} \left[ \cos \beta \cos \frac{\Phi}{2} - i \cos(\beta - 2\alpha) \sin \frac{\Phi}{2} \right] \\ \lambda_\phi &= e^{i \frac{\Phi}{2}} \left[ \sin \beta \cos \frac{\Phi}{2} + i \sin(\beta - 2\alpha) \sin \frac{\Phi}{2} \right] \end{aligned} \quad (12)$$

La phase absolue de l'onde lumineuse étant arbitraire, nous pouvons omettre le facteur  $e^{i \frac{\Phi}{2}}$ . A l'aide de (5), nous obtenons les composantes standard :

$$\begin{aligned} \lambda_0 &= \sin \theta \left[ i \sin \frac{\Phi}{2} \cos(\beta - 2\alpha) - \cos \frac{\Phi}{2} \cos \beta \right] \\ \lambda_{\pm 1} &= \frac{e^{\pm i\Phi}}{\sqrt{2}} \left[ \sin \frac{\Phi}{2} \sin(\beta - 2\alpha) \mp \cos \theta \cos \frac{\Phi}{2} \cos \beta \right. \\ &\quad \left. \pm i \sin \frac{\Phi}{2} \cos \theta \cos(\beta - 2\alpha) - i \cos \frac{\Phi}{2} \sin \beta \right] \end{aligned} \quad (13)$$

On voit sur la formule (2) que la lumière de fluorescence s'exprime en fonction des produits  $\lambda_p \lambda_p^*$ . De même, la réponse linéaire des atomes s'exprime en fonction des produits  $e_q e_q^*$  (formules IV, 13, 14, 25, 26). Nous donnons ici la valeur de ces différents produits :

$$\begin{aligned}
 |\lambda_0|^2 &= \sin^2 \theta \left[ \sin^2 \frac{\Phi}{2} \cos^2(\beta-2\alpha) + \cos^2 \frac{\Phi}{2} \cos^2 \beta \right] \\
 |\lambda_{\pm 1}|^2 &= \frac{1}{2} \left\{ 1 - \sin^2 \theta \left[ \sin^2 \frac{\Phi}{2} \cos^2(\beta-2\alpha) + \cos^2 \frac{\Phi}{2} \sin^2 \beta \right] \pm \sin \Phi \cos \theta \sin 2(\alpha-\beta) \right\} \\
 &= \frac{1}{2} \left\{ 1 - |\lambda_0|^2 \pm \sin \Phi \cos \theta \sin 2(\alpha-\beta) \right\} \\
 \lambda_{\pm 1} \lambda_0^* &= \\
 \frac{e^{\pm i\phi}}{\sqrt{2}} \sin \theta &\left\{ \frac{1}{2} \sin \Phi \sin 2(\alpha-\beta) \pm \cos \theta \left[ \cos^2 \frac{\Phi}{2} \cos^2 \beta + \sin^2 \frac{\Phi}{2} \cos^2(\beta-2\alpha) \right] + \frac{i}{2} \left[ \cos^2 \frac{\Phi}{2} \sin 2\beta + \sin^2 \frac{\Phi}{2} \sin(4\alpha-2\beta) \right] \right\} \\
 \lambda_{+1} \lambda_{-1}^* &= \frac{e^{2i\phi}}{2} \left\{ 1 - \left[ 1 + \cos^2 \theta \right] \left[ \cos^2 \frac{\Phi}{2} \cos^2 \beta + \sin^2 \frac{\Phi}{2} \cos^2(\beta-2\alpha) \right] - i \cos \theta \left[ \cos^2 \frac{\Phi}{2} \sin 2\beta + \sin^2 \frac{\Phi}{2} \sin(4\alpha-2\beta) \right] \right\}
 \end{aligned} \tag{14}$$

Convention de phase :

L'axe Ox (figure V-1) peut être choisi arbitrairement, ce qui a pour effet de changer arbitrairement l'angle  $\phi$ . On peut montrer que dans le résultat final, seule compte la différence  $\phi_e - \phi_d$  entre l'angle  $\phi_e$  de l'excitation et l'angle  $\phi_d$  de la détection. Par convention, nous choisirons  $\phi_e = 0$ . C'est-à-dire que pour le faisceau d'excitation  $\vec{u}_\phi = \vec{u}_y$ . L'angle de détection  $\phi_d$  ainsi défini est compatible avec celui choisi par DECOMPS dans sa thèse (33), si l'on choisit une excitation définie par le vecteur  $\vec{\lambda} = \vec{u}_x$  ( $\phi_e = 0$ ;  $\theta_e = 0$ ;  $\beta_e = 0$ ;  $\phi_e = 0$ ).

C - SEPARATION DES DIFFERENTES OBSERVABLES

Comme nous l'avons dit au début de ce chapitre, notre but est double : d'abord vérifier expérimentalement les résultats du calcul de l'effet du laser sur les atomes, et ensuite mesurer le temps de relaxation de chacune des observables atomiques. Il s'agit donc de choisir une géométrie expérimentale pour chacune des observables que l'on veut étudier.

1) Formules développées de la lumière de fluorescence

Avant de prendre séparément chaque observable, il est utile d'explicitier la formule

(2) et de rappeler les résultats du chapitre IV.

En posant :

$$L_{bg}(\vec{\lambda}) = \frac{3\gamma_{bg}}{8\pi} (2J_b + 1)(1 - x_{bg}) \ell_{bg}(\vec{\lambda}) \tag{15-a}$$

on a :

$$L_{bg}(\vec{\lambda}) = \frac{1}{3\sqrt{2}J_b+1} b\rho_0^0 + \frac{(-)^{J_b+J_g+1}}{\sqrt{2}} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \left[ (|\lambda_1|^2 - |\lambda_{-1}|^2) b\rho_0^1 - [(\lambda_1\lambda_0^* + \lambda_0\lambda_{-1}^*) b\rho_1^1 + c.c.] \right] \quad (15-b)$$

$$+ (-)^{J_b+J_g+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \left[ \frac{1-3|\lambda_0|^2}{\sqrt{6}} b\rho_0^2 - \left[ \frac{(\lambda_1\lambda_0^* - \lambda_0\lambda_{-1}^*)}{\sqrt{2}} b\rho_1^2 + c.c. \right] + [\lambda_1\lambda_{-1}^* b\rho_2^2 + c.c.] \right]$$

$$L_{bg}(\vec{\lambda}) = \frac{1}{3\sqrt{2}J_b+1} b\rho_0^0 + \frac{(-)^{J_g+J_b+1}}{\sqrt{2}} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \sin\Phi \sin 2(\alpha-\beta) \left[ \cos\theta b\rho_0^1 - \sqrt{2} \sin\theta \operatorname{Re}(b\rho_1^1 e^{i\phi}) \right] \quad (15-c)$$

$$+ (-)^{J_g+J_b+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \left\{ \frac{1}{\sqrt{6}} b\rho_0^2 + \operatorname{Re}(b\rho_2^2 e^{2i\phi}) \right.$$

$$- \left[ \cos^2\frac{\Phi}{2} \cos^2\beta + \sin^2\frac{\Phi}{2} \cos^2(\beta-2\alpha) \right] \left[ \sqrt{\frac{3}{2}} \sin^2\theta b\rho_0^2 + \sin 2\theta \operatorname{Re}(b\rho_1^2 e^{i\phi}) + (1+\cos^2\theta) \operatorname{Re}(b\rho_2^2 e^{2i\phi}) \right]$$

$$\left. + \left[ \cos^2\frac{\Phi}{2} \sin 2\beta + \sin^2\frac{\Phi}{2} \sin(4\alpha-2\beta) \right] \left[ \sin\theta \operatorname{Im}(b\rho_1^2 e^{i\phi}) + \cos\theta \operatorname{Im}(b\rho_2^2 e^{2i\phi}) \right] \right\}$$

Rappelons maintenant les formules (IV,25), donnant la réponse linéaire des atomes dans le niveau b. Il n'est pas utile de rappeler les formules (III,26) pour le niveau inférieur a; en effet la dépendance angulaire est identique pour les deux niveaux :

$$\begin{aligned} (2)_{b\rho_0^0} &= - \frac{nD|P_{ab}|^2}{\Gamma_b(0)} \\ (2)_{b\rho_0^1} &= - \frac{nD|P_{ab}|^2}{\Gamma_b(1)} (-)^{J_a+J_b+1} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} \frac{|e_1|^2 - |e_{-1}|^2}{\sqrt{2}} \\ (2)_{b\rho_1^1} &= \frac{nD|P_{ab}|^2}{\Gamma_b(1)+i\omega_b} (-)^{J_a+J_b+1} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} \frac{e_0^* e_{-1} + e_1^* e_0}{\sqrt{2}} \\ (2)_{b\rho_0^2} &= \frac{nD|P_{ab}|^2}{\Gamma_b(2)} (-)^{J_a+J_b+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} \frac{1}{\sqrt{6}} [3|e_0|^2 - 1] \\ (2)_{b\rho_1^2} &= \frac{nD|P_{ab}|^2}{\Gamma_b(2)+i\omega_b} (-)^{J_a+J_b+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} \frac{e_1^* e_0 - e_0^* e_{-1}}{\sqrt{2}} \\ (2)_{b\rho_2^2} &= - \frac{nD|P_{ab}|^2}{\Gamma_b(2)+2i\omega_b} (-)^{J_a+J_b+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} e_1^* e_{-1} \end{aligned} \quad (16)$$

La comparaison des formules (15) et (16) montre la symétrie totale entre la polarisation de l'excitation et celle de la détection.

## 2) Etude de l'alignement

Pour obtenir un signal sensible à l'alignement, et non à l'orientation, il suffit d'utiliser une détection de polarisation rectiligne. En effet (nous l'avons déjà signalé au chapitre III, § B-3 pour l'excitation) dans ce cas, on a :

$$\lambda_q = (-)^q \lambda_{-q}^* \quad (17)$$

ce qui entraîne  $|\lambda_1|^2 - |\lambda_{-1}|^2 = \lambda_1 \lambda_0^* + \lambda_0 \lambda_{-1}^* = 0$  et annule la contribution de l'orientation dans la formule (15-b). (17) avait été montré de façon générale (formule (II,41)), mais il se vérifie aisément en posant  $\phi = 0$  (pas de lame biréfringente) dans les formules (13).

### a) Détection de $\rho_2^2$ et mesure de $\Gamma(2)$

La détection de  $\rho_2^2$  est de loin la plus facile. En effet, si l'on choisit une polarisation rectiligne "σ cohérent", c'est-à-dire dans le plan xOy perpendiculaire au champ magnétique, on obtient (en posant  $\phi = 0$  et  $\beta = \frac{\pi}{2}$  dans (13)) :

$$\lambda_0 = 0 \quad \lambda_{\pm 1} = \frac{-i}{\sqrt{2}} e^{\pm i\phi} \quad (18)$$

ce qui donne :

$$I_{bg}^\sigma(\phi) = \frac{1}{3\sqrt{2J_b+1}} b \rho_0^0 + (-)^{J_g+J_b+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \left[ \frac{1}{\sqrt{6}} b \rho_0^2 + \mathcal{R}e (b \rho_2^2 e^{2i\phi}) \right] \quad (19)$$

Remarquons que ce résultat est indépendant de  $\theta$ . Si l'on détecte la lumière de fluorescence "σ cohérente", dans deux directions  $\phi$  et  $\phi + \frac{\pi}{2}$ , on voit que :

$$I_{bg}^\sigma(\phi) - I_{bg}^\sigma(\phi + \frac{\pi}{2}) = (-)^{J_g+J_b+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} 2 \mathcal{R}e (b \rho_2^2 e^{2i\phi}) \quad (20)$$

En choisissant  $\phi = 0$  ou  $\phi = -\frac{\pi}{4}$ , on pourra donc mesurer aisément la partie réelle ou la partie imaginaire de  $b \rho_2^2$ .

Pour obtenir expérimentalement la quantité (20), il est nécessaire de soustraire électroniquement le signal donné par deux voies de détection différentes (voie de détection = banc d'optique + monochromateur + photomultiplicateur). Il est donc nécessaire d'ajuster correctement la sensibilité relative des deux voies : ceci est aisé, car on sait que l'alignement transversal s'annule en champ magnétique fort, quelle que soit son origine physique. Il suffira donc d'annuler la différence des signaux en champ magnétique fort.

Cette méthode d'opposition permet donc de mesurer  $b \rho_2^2$  quelle que soit l'origine de l'alignement. Nous l'avons en particulier utilisée, pour étudier l'alignement préexistant dans la décharge, en l'absence de toute excitation optique.



Lorsque l'on s'intéresse à l'effet de laser seul, il est préférable de ne mesurer que les variations  $\Delta l$  introduites par l'irradiation laser, de façon à ne pas être sensible à l'alignement éventuellement préexistant. Nous verrons au chapitre VI comment ceci est réalisable en modulant l'intensité du laser et détectant la modulation résultante de la lumière de fluorescence.

Si les hypothèses du calcul des chapitres II et IV sont vérifiées et si l'intensité laser est assez faible pour que l'on puisse utiliser les formules linéaires (16), on obtient pour une excitation de polarisation  $\sigma$  cohérente ( $e_{\pm} = -\frac{i}{\sqrt{2}}$ ) :

$$\Delta l_{bg}^{\sigma}(\phi=0) - \Delta l_{bg}^{\sigma}(\phi=\frac{\pi}{2}) = -nD|P_{ab}|^2 (-)^{J_a+J_g+2J_b} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} \frac{\Gamma_b(2)}{\Gamma_b^2(2)+4\omega_b^2} \quad (21)$$

Cette quantité varie, en fonction du champ magnétique, suivant une courbe de Lorentz centrée en  $H = 0$  et de largeur totale  $\Gamma_b(2)$ . En choisissant  $\phi = \pm \frac{\pi}{4}$  on obtiendrait la courbe de dispersion correspondante. C'est l'effet Hanle. Cette méthode de mesure de  $\Gamma_b(2)$ , très utilisée en pompage optique classique, a été systématiquement employée par B. DECOMPS (25)(26)(33) pour plusieurs niveaux du Néon.

Lorsque le niveau étudié est le niveau inférieur de la transition laser, le terme de transfert (IV,26) complique la forme de courbe. Si l'on connaît le temps de relaxation du niveau supérieur et la probabilité de transition  $\gamma_{ba}$ , il est encore possible de mesurer  $\Gamma_a(2)$ . La méthode d'analyse des courbes expérimentales obtenues dans ce cas a été décrite par E. GIACOBINO-FOURNIER (30)(32)(35). Nous reviendrons sur ce problème au sujet de l'orientation (chapitre VI).

b) Détection de  $\rho_1^2$

La détection de  $\rho_1^2$  peut être utile pour vérifier l'isotropie de la relaxation, c'est-à-dire pour voir si  $\rho_2^2$  et  $\rho_1^2$  ont le même temps de relaxation  $1/\Gamma(2)$ . Bien que nous ayons réalisé cette détection par une autre méthode (§ D-3), nous signalons ici, pour mémoire, une méthode d'opposition facilement réalisable.

Pour détecter  $\rho_1^2$ , il faut utiliser une polarisation rectiligne sensible aux cohérences  $\Delta M = 1$ , c'est-à-dire qui soit une superposition cohérente de  $\sigma$  et de  $\pi$ . La polarisation utilisée doit donc être oblique par rapport à Oz. Choisissons par exemple  $\beta = 0$  et  $\Phi = 0$  dans les formules (13) et (14). On trouve :

$$\lambda_0 = -\frac{1}{\sqrt{2}} ; \quad \lambda_{\pm 1} = \mp \frac{e^{\pm i\phi}}{\sqrt{2}} \cos \theta ; \quad \lambda_1 \lambda_0^* - \lambda_0 \lambda_{-1}^* = \frac{e^{i\phi}}{\sqrt{2}} \sin 2\theta \quad (22)$$

(15-b) montre alors que la sensibilité de la détection de  $\rho_1^2$  est maximum pour  $\theta = \frac{\pi}{4}$ , c'est-à-dire lorsque le vecteur polarisation est à 45° du champ magnétique. On trouve alors :

$$l_{bg}(\theta=\frac{\pi}{4}, \phi) - l_{bg}(\theta=\frac{\pi}{4}, \phi+\pi) = (-)^{J_b+J_g} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} 2 \operatorname{Re} (\rho_1^2 e^{i\phi})$$

Pour créer le maximum d'alignement  $\rho_1^2$  avec le laser, les formules (16) montrent qu'il faut utiliser la même polarisation à l'excitation. On peut ainsi obtenir un effet Hanle de la forme  $\frac{1}{\Gamma_b^2(2) + \omega_b^2}$  qui permet de mesurer le temps de relaxation de  $\rho_1^2$ .

Remarque.

La détection (ou l'excitation)  $\beta = 0$ ,  $\theta = \frac{\pi}{4}$ ,  $\phi$  est équivalente à la détection  $\beta = \frac{\pi}{4}$ ,  $\theta = \frac{\pi}{2}$ ,  $\phi = \frac{\pi}{2}$

c) Rapport  $\rho_2^2/\rho_0^0$  - détermination de  $\Gamma(0) / \Gamma(2)$

Il n'est pas facile d'isoler  $\rho_0^2$  par une méthode d'opposition. Par contre, il est plus facile de mesurer le rapport des modifications de population et d'alignement longitudinal induites par le laser. Pour cela, on utilise deux raies de fluorescence différentes, en polarisation  $\pi$  ( $\lambda_0 = 1 \rightarrow \theta_d = \frac{\pi}{2}$ ,  $\beta_d = 0$ ,  $\phi$  quelconque). En effet, moyennant quelques précautions expérimentales largement discutées par DECOMPS (<sup>33</sup>), on peut former la quantité :

$$F(b, g, g') = \frac{\Delta L_{bg}^{\pi}}{\Delta L_{bg'}^{\pi}} \cdot \frac{{}^0L_{bg'}^{\pi}}{{}^0L_{bg}^{\pi}} = \frac{1 + (-)^{J_g + J_b} \sqrt{6(2J_b + 1)} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \frac{\Delta_b \rho_0^2}{\Delta_b \rho_0^0}}{1 + (-)^{J_{g'} + J_b} \sqrt{6(2J_b + 1)} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_{g'} & J_b & J_b \end{Bmatrix} \frac{\Delta_b \rho_0^2}{\Delta_b \rho_0^0}} \quad (23)$$

${}^0L_{bg}^{\pi}$  est la lumière de fluorescence émise en l'absence d'irradiation laser : dans la définition de F, la normalisation par  ${}^0L_{bg'}/{}^0L_{bg}$  est nécessaire pour éliminer le facteur provenant de (15-a), qui dépend de la raie utilisée et, en particulier, de sa réabsorption possible. Remarquons que la formule (23) n'est valable que si il n'existe pas d'alignement en l'absence d'irradiation laser. Il faut de plus que  $J_g \neq J_{g'}$ , si non  $F = 1$ . Si l'intensité laser est assez faible,  $\Delta_b \rho = \binom{2}{b} \rho + \binom{4}{b} \rho + \dots \approx \binom{2}{b} \rho$ , on peut alors remplacer  $\Delta_b \rho$  par les expressions (16) de  $\binom{2}{b} \rho$ . Dans le cas utilisé par DECOMPS, la polarisation du laser étant "σ cohérente" ( $e_{\pm 1} = -\frac{i}{\sqrt{2}}$ ), (23) donne:

$$F(b, g, g') = \frac{1 - A_{ag}^{b(2)} \frac{\Gamma_b(0)}{\Gamma_b(2)}}{1 - A_{ag'}^{b(2)} \frac{\Gamma_b(0)}{\Gamma_b(2)}} \quad (24)$$

en posant :

$$A_{ag}^{b(k)} = 3(2J_b + 1) (-)^{2J_b + J_a + J_g} \begin{Bmatrix} k & 1 & 1 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} = 3(2J_b + 1) A_{ag}^{b(k)} \quad (25)$$

Il est donc possible de mesurer  $\Gamma_b(0)$  si l'on connaît  $\Gamma_b(2)$  par l'étude préalable de  $\rho_2^2$ .

d) Taux d'anisotropie : Autre détermination de  $\Gamma_b(0)/\Gamma_b(2)$  (polarisation "σ cohérente")

La formule (19) montre que la lumière de fluorescence de polarisation "σ cohérente" ( $\lambda_0 = 0$ ,  $\lambda_{+1} = -\lambda_{-1}^*$ ) contient un terme isotrope, c'est-à-dire indépendant de l'angle  $\phi$ , et un terme anisotrope, qui en dépend. C'est d'ailleurs cette propriété qui nous a permis d'isoler  $\rho_2^2$  par opposition (formule 20).

Si la polarisation du faisceau laser est définie par  $e_{\pm 1} = -\frac{i}{\sqrt{2}}$  ( $\phi_e = 0$ ,  $\beta_e = \frac{\pi}{2}$ ) : cette convention n'est pas la même que celle de DECOMPS qui correspond à  $\phi_e = \frac{\pi}{2}$ , la partie anisotrope est extrémum pour  $\phi = 0$  et  $\phi = \frac{\pi}{2}$ . On peut définir le taux d'anisotropie induit par le laser, en champ magnétique nul :

$$R' = \frac{\Delta L_{bg}^{\sigma}(\phi=0) - \Delta L_{bg}^{\sigma}(\phi=\frac{\pi}{2})}{\Delta L_{bg}^{\sigma}(\phi=0) + \Delta L_{bg}^{\sigma}(\phi=\frac{\pi}{2})} = \frac{(-)^{J_g+J_b+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \Delta_b \rho_2^2(H=0)}{\frac{1}{3\sqrt{2J_b+1}} \Delta_b \rho_0^2(H=0) + \frac{1}{\sqrt{6}} (-)^{J_g+J_b+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \Delta_b \rho_0^2(H=0)} \quad (26)$$

En utilisant (16), on obtient, pour une intensité laser très faible :

$$R' = \frac{\frac{1}{2} A_{ag}^{b(2)}}{\frac{1}{3} \frac{\Gamma_b(2)}{\Gamma_b(0)} + \frac{1}{6} A_{ag}^{b(2)}} \quad (27)$$

La mesure de R fournit donc une seconde méthode de détermination du rapport  $\Gamma(2)/\Gamma(0)$ . Cette méthode est tout à fait indépendante de celle basée sur la mesure de F.

e) Remarques sur R' et F

R.1 : L'utilisation des formules (24) et (27) pour la mesure de  $\Gamma_b(0)$  nécessite avant tout que les hypothèses des chapitres II et IV soient vérifiées pour que l'on puisse utiliser les formules (16). Les deux conditions principales sont :

- a) les relaxations doivent être isotropes pour que le coefficient de relaxation  $\Gamma_b(2)$  de  $\rho_0^2$  soit égal à celui de  $\rho_2^2$  (déterminé par l'effet Hanle). Pour tester l'isotropie des relaxations, on peut d'une part comparer les valeurs de  $\Gamma_b(2)$  obtenues à partir de  $\rho_2^2$  et de  $\rho_1^2$ , d'autre part, comparer les valeurs du rapport  $\Gamma_b(0)/\Gamma_b(2)$  obtenues à partir de F et à partir des différentes valeurs de R', pour les différentes raies de fluorescence issues de b.
- B) Il ne doit pas y avoir d'alignement créé par la décharge, en l'absence d'irradiation laser. Nous discuterons ce problème au chapitre IX et nous estimerons l'ordre de grandeur des corrections à partir des valeurs expérimentalement observées de l'anisotropie initiale.

R.2 : Les expressions (23) et (27) de F et de R' sont valables pour le niveau supérieur de la transition laser. Pour le niveau inférieur, on mesure en fait la quantité (cf. II,26) :

$$\left[ \frac{\Gamma_a(2)}{\Gamma_a(0)} \right]^* = \frac{\Gamma_a(2)}{\Gamma_a(0)} \frac{1 - \gamma_{ba}/\Gamma_b(0)}{1 - \mathcal{A}(b,a,1,2) \gamma_{ba}/\Gamma_b(2)} \quad (28)$$

où  $\mathcal{A}(b,a,1,2)$  est le coefficient de transfert (II,75) tabulé au paragraphe IV-B-3. DECOMPS (thèse (33) ch. IV-B) a largement discuté la façon de déterminer  $\Gamma_a(0)$  et  $\gamma_{ba}$  à partir des mesures de  $\Gamma_b(0)$ ,  $\Gamma_b(2)$ ,  $\Gamma_a(2)$  et  $\left[ \frac{\Gamma_a(2)}{\Gamma_a(0)} \right]^*$  ; nous ne reviendrons pas sur ce point.

R.3 : Les grandeurs mesurées expérimentalement R' et F sont obtenues par la comparaison de deux voies de détection différentes, et pour une intensité laser qui n'est pas infiniment petite. Nous renvoyons également au chapitre IV-B de la thèse de DECOMPS pour la discussion de la méthode permettant d'obtenir effectivement les expressions théoriques (24) et (27) de F et R' (équilibre des voies et extrapolation à intensité de laser nulle, le tout compliqué par l'inhomogénéité de l'excitation optique).

Au chapitre VII, nous discuterons l'influence des effets non linéaires sur R' et F. En particulier, nous montrerons qu'il est préférable de mesurer les valeurs F' de F en champ magnétique nul car F', comme R', ne dépend pas de l'intensité laser dans un certain nombre de cas.

### 3) Etude de l'orientation

Pour détecter (ou créer) de l'orientation, il faut utiliser une polarisation elliptique, et, de préférence, circulaire (on voit sur la formule (15-c) que le maximum est obtenu pour  $\phi = \frac{\pi}{2}$  et  $\beta - \alpha = \frac{\pi}{4}$ , c'est-à-dire pour un analyseur circulaire). On peut voir qu'il est possible de mesurer la projection de l'orientation (c'est-à-dire du moment magnétique macroscopique) sur n'importe quel axe  $(\theta, \phi)$ , en mesurant la différence de l'intensité lumineuse émise dans cette direction avec la polarisation circulaire droite ( $\phi = \frac{\pi}{2}$ ) et la polarisation circulaire gauche ( $\phi = -\frac{\pi}{2}$ ). On obtient :

$$I_{bg}^d(\theta, \phi) - I_{bg}^g(\theta, \phi) = -\sqrt{2} (-)^{J_g + J_b + 1} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} [\cos \theta \rho_0^1 - \sqrt{2} \sin \theta \mathcal{R}e(\rho_1^1 e^{i\phi})] \quad (29)$$

On peut vérifier que cette expression est proportionnelle à la projection du moment magnétique sur l'axe  $\vec{u}(\theta, \phi)$ . En effet, l'opérateur correspondant s'écrit (en utilisant les opérateurs de rotation; cf. MESSIAH, app. C, § V) :

$$M_u^{\pm} = R(\phi, \theta, 0) M_z R^{-1}(\phi, \theta, 0) = \frac{\langle J_b | |\vec{M}| | J_b \rangle}{\sqrt{3}} \sum_{q=-1}^1 T_q^1 R_{q0}^{(1)}(\phi, \theta, 0)$$

Donc :

$$\begin{aligned} \langle M_{\vec{u}}^{\dagger} \rangle &= \text{Tr}(\rho M_{\vec{u}}^{\dagger}) = \frac{\langle J_b | \vec{M} | J_b \rangle}{\sqrt{3}} \sum_q (-)^q R_{q0}^{(1)}(\phi, \theta, 0) \text{Tr}(\rho T_{-q}^{\dagger}) \\ &= \frac{\langle | \vec{M} | \rangle}{\sqrt{3}} \left[ \cos\theta \rho_0^1 - \frac{\sin\theta}{\sqrt{2}} \rho_1^1 e^{i\phi} + \frac{\sin\theta}{\sqrt{2}} \rho_{-1}^1 e^{-i\phi} \right] = \frac{\langle | \vec{M} | \rangle}{\sqrt{3}} \left[ \cos\theta \rho_0^1 - \sqrt{2} \sin\theta \mathcal{R}e(\rho_1^1 e^{i\phi}) \right] \end{aligned} \quad (30)$$

La détection de  $\rho_0^1$  peut donc se faire en choisissant l'angle  $\theta = 0$ , mais l'équilibrage des voies de détection n'est pas facile à réaliser. Par contre, la détection de  $\mathcal{R}e(\rho_1^1 e^{i\phi})$  ( $\theta = \frac{\pi}{2}$ ) est beaucoup plus facile car l'orientation transversale s'annule en champ magnétique fort, ce qui permet l'équilibrage.

### Mesure de $\Gamma_b(1)$

Si l'on utilise une excitation laser faible, perpendiculaire au champ magnétique ( $\theta_e = \frac{\pi}{2}$ ) et de polarisation circulaire, on obtient (en utilisant (16), (25) et (29)) :

$$\mathcal{L}_{bg}^d\left(\frac{\pi}{2}, \phi\right) - \mathcal{L}_{bg}^g\left(\frac{\pi}{2}, \phi\right) = \mathcal{L}_{bg}^d\left(\frac{\pi}{2}, \phi\right) - \mathcal{L}_{bg}^d\left(\frac{\pi}{2}, \phi + \pi\right) = nD |P_{ab}|^2 A_{ag}^b(1) \mathcal{R}e\left(\frac{e^{i\phi}}{\Gamma_b(1) + i\omega_b}\right) \quad (31)$$

Suivant le choix de l'angle  $\phi$  on obtiendra une courbe de Lorentz ( $\phi=0$ ) de largeur  $2\Gamma_b(1)$  ou la courbe de dispersion correspondante ( $\phi = \frac{\pi}{2}$ ).

Notre montage expérimental nous impose de détecter la lumière perpendiculairement à l'excitation laser (structure tubulaire de la cellule); on ne peut donc, dans le montage ci-dessus, obtenir que la courbe de dispersion ( $\phi = \frac{\pi}{2}$ ).

Il est cependant possible d'obtenir une courbe de Lorentz en utilisant une excitation et une détection à  $45^\circ$  du champ magnétique (excitation :  $\phi_e = 0, \theta_e = \frac{\pi}{4}$ ; détection :  $\phi_d = \pi, \theta_d = \frac{\pi}{4}$ ). On obtient le signal :

$$\mathcal{L}_{bg}^d\left(\frac{\pi}{4}, \pi\right) - \mathcal{L}_{bg}^g\left(\frac{\pi}{4}, \pi\right) = \mathcal{L}_{bg}^d\left(\frac{\pi}{4}, \pi\right) - \mathcal{L}_{bg}^d\left(\frac{3\pi}{4}, 0\right) = \frac{nD |P_{ab}|^2}{2} A_{ag}^b(1) \left[ \frac{-\Gamma_b(1)}{\Gamma_b^2(1) + \omega_b^2} + \frac{1}{\Gamma_b(1)} \right] \quad (32)$$

Avec cette géométrie du montage, on perd un facteur 2 sur le signal et on complique l'interprétation des termes de saturation du fait du mélange de  $\rho_0^1$  et  $\rho_1^1$ . Par contre, il est beaucoup plus facile d'effectuer la correction de transfert (niveau inférieur) sur une forme de Lorentz que sur une forme de dispersion.

Une dernière méthode consiste, sans opposition, à choisir des polarisations d'excitation et de détection qui ne se recoupent que pour l'observable  $\rho_1^1$  (et éventuellement les grandeurs longitudinales). En particulier, nous remarquons qu'une détection circulaire n'est sensible qu'à  $\rho_0^0, \rho_0^2, \rho_1^1$ , et  $\rho_2^2$  si  $\theta_d = \frac{\pi}{2}$ . Si l'excitation n'introduit pas de cohérences  $\Delta M = 2$ , il n'y aura pas d'alignement  $\rho_2^2$  : le seul effet Hanle détecté viendra de  $\rho_1^1$  et donnera  $\Gamma(1)$  à la limite des faibles intensités laser. Pour qu'il n'y ait pas de cohérence  $\Delta m = 2$ , il faut avoir  $\lambda_{+1} = 0$  (ou  $\lambda_{-1} = 0$ ), ce qui peut s'obtenir (formule 13) avec les conditions :  $\beta_e = \frac{\pi}{2}$  (cette condition est imposée sur notre montage),  $\beta_e - \alpha_e = \frac{\pi}{4}$  et  $\text{tg} \frac{\phi_e}{2} = \frac{1}{\cos \theta_e}$ .

Dans ces conditions, on a (cf. (12))

$$e_\phi = \cos \frac{\phi_e}{2} \qquad e_\theta = -i \sin \frac{\phi_e}{2}$$

On voit donc qu'il faut exciter avec un faisceau de polarisation elliptique, de grand axe parallèle à  $\vec{u}_\theta$  et dont le rapport (petit axe/grand axe) vaut  $\cos \theta$ . Comme on pouvait s'y attendre puisque  $\lambda_1 = 0$ , cette ellipse se projette suivant un cercle, sur le plan xOy.

Cette méthode a effectivement été essayée mais a été abandonnée du fait de la difficulté de l'ajustage de l'ellipticité de la lumière laser.

4) Choix des raies d'excitation et de détection

Lorsque l'on peut choisir entre plusieurs raies laser différentes, ou plusieurs raies de fluorescence pour l'étude d'un niveau donné, b, c'est le coefficient  $A_{ag}^{b(k)}$  (défini en (25)) qui permet de déterminer le meilleur choix. En effet, c'est lui qui détermine le contraste entre l'effet Hanle provenant des grandeurs tensorielles d'ordre k et le fond provenant de la population seule (k = 0). Ceci se voit aisément pour l'alignement (k = 2) sur les formules (21), (23) et (27) et pour l'orientation (k = 1) sur les formules (31) et (32). Le coefficient  $A_{ag}^{b(k)}$  a donc un effet fondamental sur le rapport signal sur bruit des expériences d'effet Hanle et sur la précision de la mesure des temps de relaxation. Nous donnons ses valeurs, pour  $J_b = 1$  ou 2, dans le tableau V-1

$J_b = 1$

$A_{ag}^{b(1)} =$

$J_a \backslash J_g$	0	1	2
0	1	$\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{2}$
1	$\frac{1}{2}$	$\frac{1}{4}$	$-\frac{1}{4}$
2	$-\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{4}$	$\frac{1}{4}$

$A_{ag}^{b(2)} =$

$J_a \backslash J_g$	0	1	2
0	1	$-\frac{1}{2}$	$\frac{1}{10}$
1	$-\frac{1}{2}$	$\frac{1}{4}$	$-\frac{1}{20}$
2	$\frac{1}{10}$	$-\frac{1}{20}$	$\frac{1}{100}$

$J_b = 2$

$A_{ag}^{b(1)} =$

$J_a \backslash J_g$	1	2	3
1	$\frac{3}{4}$	$\frac{1}{4}$	$-\frac{1}{2}$
2	$\frac{1}{4}$	$\frac{1}{12}$	$-\frac{1}{6}$
3	$-\frac{1}{2}$	$-\frac{1}{6}$	$\frac{1}{3}$

$A_{ag}^{b(2)} =$

$J_a \backslash J_g$	1	2	3
1	$\frac{7}{20}$	$-\frac{7}{20}$	$\frac{1}{10}$
2	$-\frac{7}{20}$	$\frac{7}{20}$	$-\frac{1}{10}$
3	$\frac{1}{10}$	$-\frac{1}{10}$	$\frac{1}{35}$

TABLEAU V-1

D - METHODES DE POLARISATION MODULEE

1) Polarisation modulée à la détection

Plusieurs méthodes de détection proposées ci-dessus sont basées sur l'opposition entre les signaux obtenus par deux voies de détection, de polarisations orthogonales (au sens large). Au lieu d'opposer deux voies de détection différentes, on peut utiliser une seule voie sur laquelle on place alternativement, de façon périodique, chacun des deux analyseurs (57) : la modulation résultante du signal photoélectrique est alors proportionnelle au signal que l'on aurait obtenu par opposition. Cette constatation a donné naissance à deux techniques de détection très utilisées depuis quelques années :

- La méthode du polariseur tournant dans son plan qui permet de détecter les composantes de l'alignement : par le choix de la phase de la détection synchrone qui analyse le courant photoélectrique, on choisit les deux polarisations orthogonales "à opposer".

- La méthode de la lame quart d'onde tournante, placée devant un polariseur fixe, qui permet de mesurer simultanément les composantes de l'alignement et de l'orientation (44)(58). En effet,

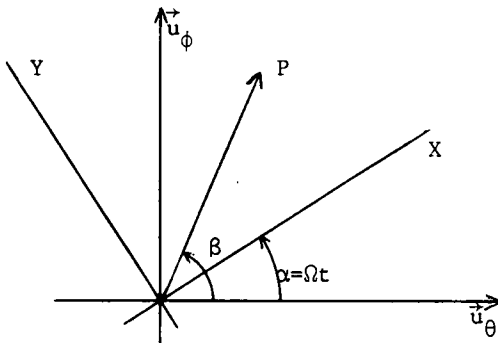


FIGURE V-3

quatre fois par tour, une des lignes neutres de la lame quart d'onde est parallèle au polariseur, ce qui donne un analyseur rectiligne. Deux fois par tour ( $\beta - \alpha = \frac{\pi}{4} + n\pi$ ), on obtient un analyseur circulaire droit et deux fois par tour ( $\beta - \alpha = -\frac{\pi}{4} + n\pi$ ), un analyseur circulaire gauche.

Donc, si on appelle  $\Omega$  la fréquence de rotation de la lame, on voit que l'amplitude de la modulation à  $2\Omega$  donne la projection de l'orientation sur la direction  $(\theta, \phi)$  du faisceau

détecteur. Au contraire, la modulation à  $4\Omega$  permet de mesurer différentes composantes de l'alignement, suivant le choix de la phase de la détection synchrone et le choix de  $\theta$  et de l'angle  $\beta$  du polariseur. En effet, lorsque l'on a un analyseur circulaire (4 fois par tour, car cela ne dépend pas du sens de l'analyseur), l'intensité de la lumière détectée reflète une superposition des composantes  $\rho_q^2$  différente de celle obtenue avec un analyseur rectiligne (4 fois par tour également).

2) Polarisation modulée à l'excitation

La symétrie entre la dépendance angulaire de la détection (15-b) et de l'excitation (16) suggère d'utiliser la méthode de modulation de la polarisation sur le faisceau exciteur lui-même. Les modulations observées sur la lumière de fluorescence sont alors dues à une modulation des observables atomiques elles-mêmes.

Pour que le calcul de la matrice densité stationnaire des chapitres II et IV reste valable, il faut que la modulation de la polarisation du faisceau laser soit suffisamment lente pour que les atomes "suivent". Plus précisément, il faut que la période de la modulation soit très supérieure à tous les temps de relaxation atomiques. Cette méthode serait inutilisable pour un pompage optique classique du niveau fondamental car les constantes de temps sont très longues; par contre, elle est très utilisable pour l'étude de niveaux excités. En effet, les fréquences de modulation utilisées sont de quelques centaines de Hertz ( $\frac{2\pi}{\Omega} \gtrsim 10^{-3}$  s) et les durées de vie atomiques de l'ordre de  $10^{-8}$  s.

On peut réécrire les formules (16) en posant  $\alpha = \Omega t$ , dans les formules (14). Pour alléger l'écriture, nous ne conservons que la partie modulée des observables et nous posons  $\beta = \pi/2$ , comme c'est le cas dans notre montage expérimental. Si  $\beta$  est différent de  $\pi/2$ , seule la phase de la modulation change puisque  $\beta$  n'intervient que sous la forme  $\Omega t - \frac{1}{2}\beta$ . La partie non modulée des observables dépend de  $\beta$ , mais nous ne la détectons pas. Si l'intensité du laser est assez faible, la partie modulée des observables atomiques est donc :

$$\begin{aligned}
 (2) \rho_{b0}^1(\text{mod}) &= \frac{nD|P_{ab}|^2}{\Gamma_b(1)} (-)^{J_a+J_b+1} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} \frac{1}{\sqrt{2}} \sin \phi_e \cos \theta_e \sin 2\Omega t \\
 (2) \rho_{b1}^1(\text{mod}) &= -\frac{nD|P_{ab}|^2}{\Gamma_b(1)+i\omega_b} (-)^{J_a+J_b+1} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} \frac{1}{2} \sin \phi_e \sin \theta_e \sin 2\Omega t \\
 (2) \rho_{b0}^2(\text{mod}) &= -\frac{nD|P_{ab}|^2}{\Gamma_b(2)} (-)^{J_a+J_b+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} \frac{3}{2\sqrt{6}} \sin^2 \frac{\phi_e}{2} \sin^2 \theta_e \cos 4\Omega t \\
 (2) \rho_{b1}^2(\text{mod}) &= -\frac{nD|P_{ab}|^2}{\Gamma_b(2)+i\omega_b} (-)^{J_a+J_b+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} \frac{1}{2} \sin^2 \frac{\phi_e}{2} \left[ \frac{1}{2} \sin 2\theta_e \cos 4\Omega t - i \sin \theta_e \sin 4\Omega t \right] \\
 (2) \rho_{b2}^2(\text{mod}) &= -\frac{nD|P_{ab}|^2}{\Gamma_b(2)+2i\omega_b} (-)^{J_a+J_b+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} \frac{1}{2} \sin^2 \frac{\phi_e}{2} \left[ \frac{1+\cos^2 \theta_e}{2} \cos 4\Omega t - i \cos \theta_e \sin 4\Omega t \right]
 \end{aligned} \tag{33}$$

Nous retrouvons les caractéristiques principales de la détection modulée :

- L'orientation est modulée à  $2\Omega$  et l'alignement à  $4\Omega$ .
- La valeur du retard de phase  $\phi_e$ , de la lame biréfringente, n'est pas critique :  $\phi_e$  ne joue que sur l'amplitude des modulations. La modulation de l'orientation est maximum pour  $\phi_e = \pi/2$  (lame quart d'onde), tandis que la détection de l'alignement est maximum pour  $\phi_e = \pi$  (lame demi-onde tournante + polariseur = polariseur tournant).



3) Choix de la détection dans le cas d'une excitation modulée

Avec cette méthode, la détection est très simplifiée, car en isolant, dans la lumière de fluorescence, la composante modulée à  $2\Omega$ , on obtient l'orientation seule et la composante à  $4\Omega$  donne l'alignement seul. Le choix de la direction et de la polarisation de la détection a pour seul rôle de choisir la composante désirée de l'orientation ou de l'alignement et d'optimiser le signal.

Signalons simplement deux géométries expérimentales que nous avons utilisées :

• Géométrie n° 1

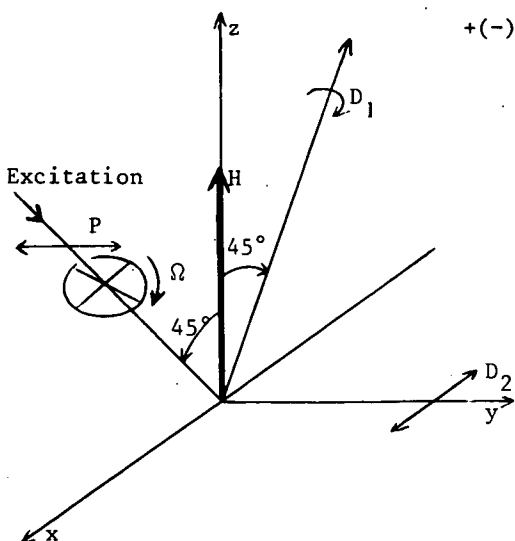
Le choix de cette géométrie a été guidé par le désir d'obtenir l'effet Hanle d'orientation sous une forme de Lorentz. En effet, cette forme est plus facile à analyser dans le cas du niveau inférieur, perturbé par le transfert radiatif à partir du niveau supérieur. Comme nous l'avons déjà signalé au paragraphe C-3, pour obtenir une courbe de Lorentz, il faut que la détection (de polarisation circulaire) se fasse suivant l'angle  $\phi = 0$  ou  $\phi = \pi$ , c'est-à-dire qu'il faut que la direction d'excitation, la direction de détection et le champ magnétique soient dans le même plan. Comme d'autre part, il faut que la détection soit perpendiculaire à l'excitation, nous avons fait le choix suivant (figure V-4) :

- excitation modulée ( $E_x$ ) :  $\theta_e = \frac{\pi}{4}$      $\phi_e = 0$  (par définition)
- détection circulaire ( $D_1$ ) :  $\theta_d = \frac{\pi}{4}$      $\phi_d = \pi$

(15-c) donne alors :

$$l_{bg}(D_1) = \frac{1}{3\sqrt{2}J_b+1} b\rho_0^0 + \frac{(-)^{J_b+J_g+1}}{2} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \left[ b\rho_0^1 + \sqrt{2} \operatorname{Re}(b\rho_1^1) \right] \quad (34-a)$$

$$+ (-)^{J_b+J_g+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \left[ \frac{1}{4\sqrt{6}} b\rho_0^2 + \frac{1}{2} \operatorname{Re}(b\rho_1^2) + \frac{1}{4} \operatorname{Re}(b\rho_2^2) \right]$$



Le signal détecté à  $2\Omega$  est alors (cf. (33)) :

$$l_{bg}(D_1, 2\Omega) = \frac{nD|P_{ab}|^2}{4} A_{ag}^b(1) \sin 2\Omega t \sin \phi_e \frac{1}{\Gamma_b(1)} \left[ 1 - \frac{\Gamma_b(1)^2}{\Gamma_b(1)^2 + \omega_b^2} \right] \quad (34-b)$$

On peut simultanément mesurer  $\Gamma(2)$  en isolant la modulation à  $4\Omega$  de la lumière de fluorescence détectée derrière un polariseur rectiligne, perpendiculaire au champ magnétique : par exemple la voie  $D_2$  dans la direction  $Oy$  ( $\theta_d = \pi$ ,  $\phi_d = \frac{\pi}{2}$ ,  $\phi_e = 0$ ,  $\beta = \frac{\pi}{2}$ )

FIGURE V-4

$$l_{bg}(D_2) = \frac{1}{3\sqrt{2}J_b+1} b\rho_0^0 + (-)^{J_b+J_g+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \left[ \frac{1}{\sqrt{6}} b\rho_0^2 - \mathcal{R}e(b\rho_2^2) \right] \quad (35-a)$$

$$l_{bg}(D_2, 4\Omega) = \frac{nD|P_{ab}|^2}{8} A_{ag}^b(2) \sin^2 \frac{\phi_e}{2} \left[ \cos 4\Omega t \left( \frac{3\Gamma_b(2)}{\Gamma_b(2)^2+4\omega_b^2} - \frac{1}{\Gamma_b(2)} \right) - \sin 4\Omega t \frac{4\sqrt{2}\omega_b}{\Gamma_b(2)^2+4\omega_b^2} \right] \quad (35-b)$$

Suivant la phase de la détection synchrone utilisée à  $4\Omega$ , on obtient une courbe de Lorentz ou une courbe de dispersion.

### Géométrie n° 2

Le but de ce montage est de séparer rigoureusement (dans la mesure où les formules (33) sont valables) chaque observable transversale. Nous choisissons pour cela la direction d'excitation  $\phi_e=0$ ,  $\theta_e=\pi/2$  : on voit en effet (formules (33)) que dans ces conditions  $\rho_1^2$  est proportionnel à  $\sin 4\Omega t$  et  $\rho_2^2$  à  $\cos 4\Omega t$ . On peut donc les séparer par le choix de la phase de la détection.

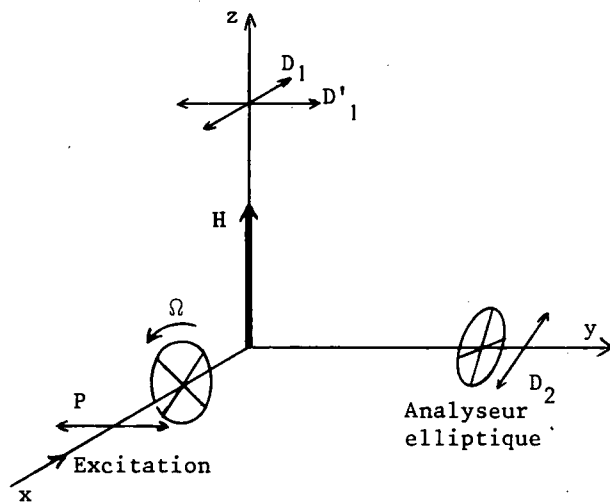


FIGURE V-5

pour éviter d'utiliser deux bancs d'optique différents ( $\phi = \pm\frac{\pi}{2}$ ), on peut utiliser une polarisation elliptique. Pour une ellipticité donnée, la sensibilité de la détection de  $\rho_1^1$  est indépendante de l'orientation des axes, tandis que la sensibilité de la détection de  $\rho_1^2$  est maximum si les axes de l'ellipse sont à  $45^\circ$  du champ magnétique : il faudra donc choisir  $\alpha = \frac{\pi}{4}$  (ligne neutre de la lame quart d'onde à  $45^\circ$  du champ magnétique). Le choix de l'angle  $\beta$  du polariseur permet de favoriser soit  $\rho_1^1$  soit  $\rho_1^2$ . Un bon compromis est obtenu avec  $\beta - \alpha = \frac{\pi}{8}$ . On obtient alors (cf. (15-c) et (33)) :

$$l_{bg}(D_2) = \frac{b\rho_0^0}{3\sqrt{2}J_b+1} + \frac{(-)^{J_b+J_g}}{\sqrt{2}} \begin{Bmatrix} 1 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \mathcal{R}e(i_b\rho_1^1) + (-)^{J_b+J_g+1} \begin{Bmatrix} 2 & 1 & 1 \\ J_g & J_b & J_b \end{Bmatrix} \left[ -\frac{b\rho_0^2}{2\sqrt{6}} - \frac{1}{2}\mathcal{R}e(\rho_2^2) + \frac{1}{\sqrt{2}}\mathcal{I}m(i_b\rho_1^2) \right]$$

$$\begin{aligned}
 l_{bg}(D_2) = nD |P_{ab}|^2 A_{ab}^b(2) \sin^2 \frac{\phi_e}{2} & \left\{ \frac{\cos 4\Omega t}{8} \left[ \frac{1}{\Gamma_b(2)} + \frac{\Gamma_b(2)}{\Gamma_b^2(2) + 4\omega_b^2} \right] + \frac{\sin 4\Omega t}{2\sqrt{2}} \frac{\omega_b}{\Gamma_b^2(2) + \omega_b^2} \right\} \\
 & + \frac{nD |P_{ab}|^2}{2\sqrt{2}} A_{ag}^b(1) \sin \phi_e \sin 2\Omega t \frac{\omega_b}{\Gamma_b^2(1) + \omega_b^2} + \text{termes non modulés}
 \end{aligned} \tag{36-b}$$

En détectant la modulation à  $2\Omega$ , on obtiendra une courbe de dispersion donnant  $\Gamma_b(1)$ . En détectant  $\sin 4\Omega t$ , on obtiendra une courbe de dispersion de largeur  $2\Gamma_b(2)$ , issue uniquement de  $\rho_1^2$ .

#### 4) Avantages et inconvénients de l'excitation de polarisation modulée

##### Inconvénients de la méthode

Cette méthode de polarisation modulée à l'excitation présente un inconvénient important : les formules (33) ne sont valables que dans la mesure où les formules (16) le sont :

Il faut, en premier lieu, que le mécanisme de relaxation et l'excitation initiale par la décharge soient isotropes. En particulier, s'il existe des grandeurs anisotropes à l'ordre zéro, il est évident que les combinaisons de  $e_0$ ,  $e_1$  et  $e_{-1}$  intervenant dans les formules (16) sont modifiées et, par conséquent, on risque d'obtenir un mélange d'orientation et d'alignement pour chacune des fréquences  $2\Omega$  et  $4\Omega$ . Cependant, à l'aide des résultats de l'appendice D, on peut démontrer qu'un tel mélange n'existe pas en champ faible si, à l'ordre zéro, il n'y a pas d'orientation (uniquement de l'alignement) et si les modes sont symétriquement disposés autour de la fréquence centrale de la raie optique (donc  $\int I_\nu Y(\omega - \omega_\nu) = 0$ , car  $Y$  est pair).

Il faut, d'autre part, que l'intensité du laser soit assez faible pour que les formules au second ordre suffisent. Pour les ordres supérieurs, il est évident que la modulation de l'excitation n'est pas équivalente à la modulation de la détection : lorsqu'on module la polarisation à la détection, on observe, à la fréquence  $2\Omega$ , l'orientation globale créée par le laser à tous les ordres selon les formules du chapitre II. De même à  $4\Omega$ , on obtient l'alignement à tous les ordres et l'alignement seul. Par contre, lorsqu'on module la polarisation de l'excitation, les termes d'ordre supérieur à deux introduisent des harmoniques de  $2\Omega$  et de  $4\Omega$  dans l'orientation et l'alignement. Avec notre méthode de détection, nous ne trouvons donc pas tout l'alignement et toute l'orientation. De plus, on peut craindre de détecter de l'orientation à  $4\Omega$ .

En conclusion, les termes de saturation ne sont pas identiques avec les deux méthodes, mais l'extrapolation des mesures à intensité de laser nulle doit converger vers la bonne valeur dans les deux cas.

##### Avantages de la méthode

Les avantages sont d'ordre pratique plutôt que théorique. Nous en parlerons pourtant dès maintenant, car ils sont d'une très grande importance et justifient l'utilisation de cette méthode.

Les cellules que nous utilisons sont formées par un tube de silice étirée qui présente une importante biréfringence dont les lignes neutres sont parallèles et perpendiculaires à l'axe du tube. Nous avons pu le mettre en évidence en observant un important signal d'orientation (modulation  $2\Omega$ ) derrière un polariseur rectiligne à  $45^\circ$  de l'axe du tube.

Ceci n'est pas grave pour la détection d'une polarisation rectiligne parallèle ou perpendiculaire à l'axe du tube (expériences de DECOMPS). Par contre, on ne peut effectuer une détection parfaite ni en polarisation rectiligne oblique, ni en polarisation circulaire. Il en résulte que toute séparation des observables, basée sur une mesure du taux de polarisation de la lumière détectée, est imparfaite dans la majorité des cas.

La méthode de modulation de la polarisation à l'excitation ne se heurte pas à cette difficulté car la fenêtre d'entrée, collée au tube, est une lame de silice fondue parfaitement polie et presque orthogonale au faisceau laser : elle dépolarise donc très peu. D'autre part, la séparation des observables est basée sur la séparation électronique des fréquences  $2\Omega$  et  $4\Omega$ , et sur le choix de la phase de la détection : elle ne dépend pas de façon critique du choix des polarisations de la détection. Celles-ci ne jouent que sur l'amplitude du signal, donc sur la sensibilité de la détection. C'est particulièrement net dans le cas du montage n° 2, au paragraphe précédent.

Cet avantage est la raison principale du choix de cette méthode, cependant il y a d'autres avantages non négligeables :

- Avec une détection modulée, on mesure le taux de polarisation de la lumière quelle que soit son origine physique : on ne sépare pas l'effet du laser des effets parasites. Il faudrait donc comparer successivement une courbe avec laser et une courbe sans laser, ou alors, revenir aux méthodes (malcommodes dans les cas autres que  $\rho_2^2$ ) de l'opposition statique et de la modulation d'amplitude du laser. La méthode d'excitation par une polarisation modulée isole automatiquement l'effet du laser.

- Avec une seule lame quart d'onde tournante, on module toutes les observables des deux niveaux. Cette modulation est utilisable sur toutes les voies de détection avec une seule référence pour la détection de la phase. Dans le cas d'une modulation de la détection, il faudrait un système différent de lame quart d'onde tournante et de référence pour chaque voie. D'autre part, le faisceau laser est très étroit et il est plus facile, technologiquement, de faire une lame quart d'onde tournante de faible dimension.