CHAPITRE IX

QUELQUES REMARQUES SUR L'ANISOTROPIE DU MILIEU ATOMIQUE

Dans tout ce qui précède, nous avons supposé que la relaxation est isotrope, c'est-à-dire qu'elle ne couple pas les différentes observables tensorielles, et qu'il n'y a qu'un seul temps de relaxation par ordre tensoriel. Lorsque nous avons introduit cette hypothèse, au § II-A-5, nous avons indiqué deux phénomènes susceptibles de détruire l'isotropie de la relaxation : 1) <u>La distribution anisotrope des vitesses des atomes excités, due à la monochromaticité de l'onde</u> <u>laser</u>. Nous avons discuté assez longuement ce point au § II-A-5. D'autre part, lorsque le laser comporte un grand nombre de modes couvrant tout le profil Doppler, nous avons pu justifier l'hypothèse des relaxations isotropes pour la matrice densité moyenne, au deuxième ordre de perturbation (cf. Remarque du § II-B-5-f, p. 49). Ce cas correspond aux conditions expérimentales dans lesquelles toutes nos mesures de temps de relaxation ont été faites, c'est pourquoi nous ne reviendrons pas ici sur ce type d'anisotropies. Par contre, il serait nécessaire de reconsidérer la question pour toute expérience faite avec un laser monomode.

2) <u>Des anisotropies de relaxation provenant de la décharge elle-même</u>. On peut penser en particulier aux collisions électroniques (si la vitesse des électrons n'est pas répartie de façon isotrope) et surtout à la diffusion multiple des raies optiques dans une cellule tubulaire.

D'autre part, dans toutes les applications du formalisme général, à partir du chapitre IV, <u>nous avons supposé que l'excitation par la décharge se fait également de façon isotrope</u>, c'est-à-dire que la matrice d'excitation Λ est scalaire. Cette hypothèse peut également être mise en défaut si les électrons de la décharge n'ont pas une répartition isotrope de leurs vitesses (comme dans les expériences de bombardement électronique).

Dans ce chapitre, nous discuterons l'effet des anisotropies provenant de la décharge, que ce soient des anisotropies d'excitation ou de relaxation. Ces deux types d'anisotropies sont expérimentalement difficiles à distinguer au premier abord, car toutes deux produisent des grandeurs tensorielles k≠ 0 en l'absence de pompage optique (c'est-à-dire à l'ordre zéro des perturbations). Cependant, comme nous le verrons, leur effet sur le pompage optique est nettement différent.

Cette étude est rendue nécessaire par la mise en évidence d'une légère anisotropie en l'absence de laser.

A - MISE EN EVIDENCE EXPERIMENTALE DES ANISOTROPIES DE LA DECHARGE

Pour essayer de mettre en évidence une anisotropie à l'ordre zéro, nous avons recherché (en l'absence de laser) un effet Hanle dans la lumière de fluorescence émise par la cellule soumise à un champ magnétique perpendiculaire à son axe. En effet, qu'elles soient dues aux collisions électroniques ou à la diffusion multiple de la lumière, la relaxation et l'excitation ont la symétrie axiale du tube : elles ne peuvent créer que des termes de population ρ_0^0 et d'alignement longitudinal ρ_0^2 par rapport à l'axe de la cellule. Si l'on prend l'axe du champ magnétique comme axe de quantification, on aura donc de l'alignement transversal et on pourra observer un effet Hanle.

Comme CARRINGTON et CORNEY (⁴²), nous avions pu mettre en évidence un effet Hanle très net sur l'ensemble des niveaux 2p (J \neq 0). Nous avons également mis en évidence le même effet sur les niveaux 3s₂ et 3s₄. L'hypothèse de CARRINGTON et CORNEY, qui attribuent cet alignement à une réabsorption de la lumière de fluorescence se propageant suivant l'axe du tube (= diffusion multiple anisotrope) semble bien vérifiée par nos observations (cf. tableau IX-1, § C-3) :

• Le niveau 3ss (J=2), qui n'est pas connecté au fondamental (J=0), ne présente aucune anisotropie, dans des conditions où les niveaux 3s2 et 3s4 (J=1) en présentent.

• L'anisotropie des niveaux $3s_2$ et $3s_4$ est inobservable dans le néon pur et n'apparaît que pour des pressions partielles de néon inférieures à 0,5 Torr. L'anisotropie croît quand la pression de néon diminue (0,12% à 0,5 Torr, 0,85% à 0,1 Torr). Ceci s'explique facilement : à pression forte de Ne, la réabsorption de la raie de résonance est totale dans toutes les directions, elle est donc isotrope. L'anisotropie commence à apparaître lorsque la réabsorption n'est plus totale dans la direction perpendiculaire à l'axe du tube, mais l'est encore dans l'axe. On peut voir que l'anisotropie apparaît dans la zone de pression où les mesures de DECOMPS ont montré que la diffusion multiple commence à ne plus être totalement saturée ($\Gamma(0) \neq \Gamma(0)$ asymptotique : cf. thèse DECOMPS, figure 18-a-IV).

• L'anisotropie du niveau 3s2 dépend très peu de l'intensité de la décharge, car la population du fondamental n'en dépend pas (on peut comprendre la légère dépendance par rapport à la décharge par des considérations géométriques sur la longueur de la cellule et de la zone observée. Nous n'entrerons pas dans ces détails).

• Au contraire, l'anisotropie des niveaux 2p dépend fortement de l'intensité de décharge car la population des métastables ls, responsables de la diffusion multiple, en dépend. • L'anisotropie du niveau 2p, est une fonction croissante de la pression de néon et de la décharge. A faible décharge et à faible pression de Ne, l'anisotropie disparaît car il n'y a plus de diffusion multiple dans aucune direction (ce que DECOMPS a également montré).

Avant de pouvoir donner un ordre de grandeur de cette anisotropie et estimer son effet sur les mesures de temps de relaxation, il est indispensable d'en faire une étude théorique détaillée.

B - ETUDE THEORIQUE DE L'EFFET DES ANISOTROPIES

1) Anisotropie d'excitation et anisotropie de relaxation

Il convient de bien distinguer, même en l'absence d'irradiation laser, l'effet d'un terme source anisotrope et celui d'une relaxation anisotrope, même si tous deux se manifestent expérimentalement par une anisotropie analogue du gaz en champ nul.

Dans le premier cas, le mécanisme d'excitation (collisions électroniques, pompage optique classique), qui est instantané, laisse à l'instant initial chaque atome dans un état statistiquement anisotrope (matrice Λ). Ensuite, le système évolue sous l'effet de relaxations isotropes. Si l'on change d'axe de quantification, les équations restent identiques. Il suffit de prendre comme nouveau terme source une nouvelle matrice Λ obtenue par rotation de l'ancienne. Quels que soient les axes choisis, il n'y a pas de couplage par la relaxation entre les différentes composantes ρ_Q^k . Si l'on applique un champ magnétique, il suffit de choisir l'axe de ce champ comme axe de quantification pour que les équations restent découplées. Supposons par exemple que l'excitation ait pour axe de symétrie l'axe défini par les angles (θ , ϕ) : la matrice d'excitation est :

$$\Lambda = \lambda_0^0 T_0^0 + \lambda_0^2 T_0^2 (\theta, \phi) = \lambda_0^0 T_0^0 + \lambda_0^2 R T_0^2 R^{-1} = \lambda_0^0 T_0^0 + \lambda_0^2 \sum_q T_q^2 R_{q^0}^2 (\phi, \theta, 0)$$
(1)

Dans ces équations, $T_q^k(\theta,\phi)$ représente les opérateurs tensoriels de base dans les axes polaires définis par θ et ϕ . R est l'opérateur rotation et R_{MM}^J , les éléments de la matrice rotation dans la base $|JM \rangle$ (cf. Appendice A). En reportant les expressions (1) dans les équations d'évolution (II,47 et 48), on trouve en champ magnétique quelconque :

$${}^{(0)}_{\alpha}\rho_{q}^{2} = \frac{\alpha^{\lambda_{0}^{2}} R_{q0}^{2}(\phi,\theta,0)}{\Gamma_{\alpha}(2) + iq\omega_{\alpha}}$$
(2)

L'interaction des atomes avec le laser se traite alors comme au chapitre II (cf. Appendice D)

Dans le second cas, la matrice d'excitation est scalaire et c'est l'évolution sous

- 277 -

l'effet de <u>relaxations anisotropes</u> qui produit un état stationnaire anisotrope. Si l'on change d'axe de quantification, Λ reste invariant puisque c'est un scalaire, mais les équations d'évolution changent. Quels que soient les axes, les équations des différentes composantes ρ_q^k sont couplées. Cependant, dans le cas où il y a un axe de symétrie, les équations sont beaucoup plus simples si l'on choisit cet axe comme axe de quantification. Le couplage entre les différents termes ρ_Q^k produit, même en l'absence de laser, des courbes d'effet Hanle non Lorentzienne. De plus, il complique, à tous les ordres, les équations décrivant l'interaction avec le faisceau laser.

- 278 -

Nous avons vu que l'anisotropie observée dans la décharge est due en grande partie à l'anisotropie de la diffusion multiple : c'est une anisotropie de relaxation et non d'excitation. Nous allons donc développer l'étude de ce second cas. Toutefois, nous nous limiterons au cas où l'anisotropie est une faible correction.

2) Traitement de l'anisotropie de relaxation dans l'espace de Liouville (note)

Pour simplifier l'écriture des équations, nous considérons ici l'opérateur densité $_{\alpha}\rho$ comme un vecteur de l'espace de Liouville : $|_{\alpha}\rho$ >>. Nous considérons ici un seul niveau atomique α soumis à un champ magnétique suivant Oz. On peut alors écrire l'équation d'évolution (la moyenne sur les vitesses est déjà faite) :

$$\frac{d}{dt} |_{\alpha} \rho >> = - \{ \Gamma \} |_{\alpha} \rho >> - i \omega_{\alpha} \mathcal{J}_{z} |_{\alpha} \rho >> + | \Lambda >>$$
(3)

 $| \Lambda \rangle$ est l'opérateur d'excitation considéré comme vecteur de l'espace de Liouville. { Γ } et $\omega_{\alpha} = \mathcal{F}_z$ sont des opérateurs linéaires agissant sur l'espace de Liouville. Le premier représente la relaxation et le second est l'opérateur de Liouville correspondant à l'hamiltonien Zeeman de l'espace habituel des fonctions d'onde.

Les opérateurs tensoriels irréductibles ${}_{\alpha}T_{q}^{(k)}$ forment une base standard | kq >> de l'espace de Liouville. DUCLOY a montré que J_z est la composante z d'un opérateur vectoriel J_z qui agit sur les vecteurs |kq >> de la même façon que J sur les vecteurs |JM> de l'espace des états. Il en résulte que J_z est diagonal dans la base |kq >> :

 $\mathcal{J}_{z} |kq \rangle = q |kq \rangle$ (4)

Cette relation peut se voir directement en utilisant la projection de l'équation de Schrödinger sur la base des opérateurs T_q^k (formule (B,4)).

(note) Pour ce formalisme, voir les références : FANO (¹⁴), BEN REUVEN (⁹⁰), FANO et RACAH (⁹¹), OMONT (¹⁵). Dans sa thèse de 3e cycle, M. DUCLOY (³⁴) a donné une excellente synthèse de ce formalisme.

IX-B

Dans le cas qui nous intéresse, l'excitation est isotrope, donc :

$$|\Lambda\rangle = \alpha \lambda_0^0 |00\rangle \rangle$$
(5)

Par contre, la relaxation n'est pas isotrope : { Γ } n'est donc diagonal dans aucune base. Cependant, du fait de la symétrie axiale, { Γ } est représenté par une matrice simple dans la base $|kq^{>>}_{(\theta,\phi)}$ obtenue en quantifiant suivant l'axe de symétrie (θ,ϕ) de la relaxation. Nous appellerons $[\Gamma]$ cette matrice. En raison de l'invariance par rotation autour de l'axe de symétrie et de l'invariance par réflexion par rapport à tout plan contenant cet axe, les éléments de $[\Gamma]$ obéissent aux relations $(^{41})$:

$$(\theta,\phi)^{<_{(\theta,\phi)} = \delta_{qq'} \Gamma_{q}^{kk'}$$

$$\Gamma_{q}^{kk'} = (-)^{k+k'} \Gamma_{-q}^{kk'} = \Gamma_{-q}^{kk'^{*}} = \Gamma_{q}^{k'k^{*}}$$
(6)

Il en résulte que $\Gamma_q^{kk'}$ est réel pour k+k' pair et imaginaire pour k+k' impair. Pour q = 0, il n'y a pas de couplage si k+k' est impair.

Nous allons résoudre l'équation sous forme matricielle en utilisant alternativement la base $|kq^{>}_{(\theta,\phi)}$ et la base $|kq^{>}$ obtenue en quantifiant suivant l'axe Oz.

Appelons [ρ] la matrice colonne, d'élément de matrice ρ_q^k = <<kq $|\rho$ >>, représentant l'opérateur ρ dans la représentation T_q^k liée à l'axe Oz.

Appelons $[\sigma]$ la matrice représentant le même opérateur sur la base $T_q^k(\theta,\phi)$. Ses éléments de matrice sont $\sigma_q^k = {}_{(\theta,\phi)}^{<<kq}|\rho>>$. La relation entre les composantes dans les deux bases est (formule (A,9)) :

$$\rho_{q}^{k} = \sum_{q} R_{qq}^{(k)}(\phi, \theta, 0) \sigma_{q}^{k}, \text{ que nous \'ecrirons [}\rho] = R [\sigma]$$
(7)

En appelant $[\mathcal{J}_z]$ la matrice diagonale représentant \mathcal{J}_z dans la base T_q^k par rapport à Oz ((4) définit ses éléments de matrice), l'équation (3) s'écrit sous la forme matricielle :

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{dt}} \left[\alpha \rho \right] = -R \left[\Gamma \right] R^{-1} \left[\alpha \rho \right] - i\omega_{\alpha} \left[\mathcal{J}_{z} \right] \left[\alpha \rho \right] + \left[\alpha \lambda_{0}^{0} \right]$$
(8)

Il est en principe possible de trouver rigoureusement la solution stationnaire dans le cas général en résolvant le système linéaire à $(2J+1)^2$ inconnues obtenu en posant $\frac{d}{dt} \begin{bmatrix} \alpha \\ \alpha \end{bmatrix} = 0$. Pour J = 1, on obtient un système 9 × 9 et pour J = 2 un système 25 × 25. Nous nous limiterons donc à un calcul approché. En effet, notre but est de calculer une éventuelle (petite) correction à l'effet du laser et non de calculer la forme exacte de l'effet Hanle sans laser.

Approximation : Nous supposons l'anisotropie de la relaxation très faible et nous posons :

 $[\Gamma] = [\Gamma_{I}] + \varepsilon[\Gamma_{A}]$ (9)

 $\begin{bmatrix} \Gamma_I \end{bmatrix}$ est la matrice représentant une relaxation isotrope proche de la relaxation réelle et $\varepsilon \begin{bmatrix} \Gamma_A \end{bmatrix}$ représente une petite correction anisotrope. $\begin{bmatrix} \Gamma_I \end{bmatrix}$ est diagonal et invariant par rotation. Comme, de plus, le choix du découpage (9) est arbitraire, nous poserons :

$$[\Gamma_{I}]_{q}^{kk'} = \delta_{k,k'} \Gamma(k) = \delta_{k,k'} \Gamma_{k}^{kk}$$
(10)

En effet, les Γ_k^{kk} sont les quantités que nous mesurons habituellement par la largeur d' l'effet Hanle (provenant de ρ_1^1 ou de ρ_2^2). Les éléments de matrice de $\epsilon [\Gamma_A]$ sont alors :

$$\varepsilon \left[\Gamma_{A} \right]_{q}^{kk'} = \delta_{q}^{kk'} = \Gamma_{q}^{kk'} - \delta_{k,k'} \Gamma_{k}^{kk}$$
(11)

Le facteur ε caractérise l'importance de l'anisotropie. Il n'a pas de sens physique précis car les différents éléments de matrice de $[\Gamma_A]$ n'ont aucune raison, a priori, d'être proportionnels. Nous avons introduit ce facteur (comme dans les théories de perturbation) pour faciliter le calcul en puissances successives de la perturbation. Pour un niveau de J = 1 (k \leq 2), la matrice $[\Gamma_A]$ prend la forme :

	k		0	2	1	1	2	1	2	2	2	
		q	0	0	0	1	1	-1	-1	2	-2	
-	0	0	0	η								
_	2	0	η	δ ² 0								
	1	0			δ_0^1					i		
	1	1				0	iζ	1		r -		
	2	1				-iζ	δ ² ₁					
•	1 -1							0	-iζ			
	2	-1						iζ	δ_1^2			
	2	2								0		
	2	-2									0	

(12**-**a)

où l'on a posé conformément à (11) et à (6) :

$$\delta_{q}^{k} = \Gamma_{q}^{kk} - \Gamma(k) = \Gamma_{q}^{kk} - \Gamma_{k}^{kk}; \quad \eta = \Gamma_{0}^{02}; \quad i\zeta = \Gamma_{1}^{12}$$
(12-b)

L'équation (8) peut s'écrire :

ε[Γ_Λ] =

$$\frac{d}{dt} \left[\alpha \rho \right] = - \left[\Gamma_{I} \right] \left[\alpha \rho \right] - \varepsilon R \left[\Gamma_{A} \right] R^{-1} \left[\alpha \rho \right] - i\omega_{\alpha} \left[\mathcal{J}_{z} \right] \left[\alpha \rho \right] + \left[\alpha^{\lambda_{0}^{0}} \right]$$
(13)

Cette équation peut se résoudre par itération. A l'ordre zéro, on néglige le terme en ε et l'on obtient

la solution stationnaire isotrope habituelle. La seule composante non nulle est :

$${}^{\mathbf{I}}_{\alpha}\rho^{0}_{0} = \frac{\alpha^{\lambda_{0}}}{\Gamma_{\alpha}(0)} = {}^{\mathbf{I}}_{\alpha}\sigma^{0}_{0}$$
(14)

La solution anisotrope du premier ordre en ε est obtenue en reportant la solution d'ordre 0 dans le terme de relaxation anisotrope de (13). On obtient ainsi le terme source :

$$- \varepsilon R \left[\Gamma_{A} \right] R^{-1} \left[\frac{I}{\alpha} \rho_{0}^{\circ} \right] = - \varepsilon R \left[\Gamma_{A} \right] \left[\frac{I}{\alpha} \sigma_{0}^{\circ} \right]$$
(15)

L'action de Γ_{Λ} sur $\begin{matrix} I \sigma_0^0 \\ \alpha \sigma_0 \end{matrix}$ donne uniquement des termes de la forme $\alpha \sigma_0^k$ (k pair). La solution anisotrope d'ordre un ne contient donc que des termes d'ordre <u>k pair</u> (k $\neq 0$)

$${}^{A}_{\alpha} \boldsymbol{\rho}^{k}_{q} = - \frac{\alpha^{\lambda_{0}^{0}}}{\Gamma_{\alpha}(0)} \frac{R_{q_{0}}^{k}(\phi,\theta,0)}{\Gamma_{\alpha}(k) + iq\omega_{\alpha}} \frac{\beta^{k_{0}}}{\Gamma_{\alpha}(k) + iq\omega_{\alpha}}$$
(16)

On voit donc qu'au premier ordre par rapport à l'anisotropie, les courbes d'effet Hanle gardent la forme habituelle. Ce résultat est celui que nous aurions obtenu en prenant des équations isotropes et des termes sources de la forme :

a

$$\lambda_{q}^{*} = - R_{q0}^{k} \frac{\alpha \delta_{0}^{k0}}{\Gamma_{\alpha}(0)} \alpha \lambda_{0}^{0}$$
(17)

3) Effet de l'anisotropie sur la réponse linéaire des atomes au pompage laser

Puisque notre but est de déterminer si les mesures de temps de relaxation effectuées à l'aide de l'effet Hanle sont affectuées par l'anisotropie, nous pouvons nous limiter à l'étude de l'effet de celle-ci sur la solution d'ordre 2 par rapport au laser. Ce problème est formellement facile à résoudre puisque nous avons montré au paragraphe III-B-7 que la réponse linéaire, moyennée sur les vitesses, peut être obtenue à partir de la solution d'ordre zéro par une équation écrite dans l'espace de Liouville. Les deux équations (III,35) peuvent se rassembler sous la forme ^(note) :

$$\left[\left\{ \Gamma \right\} + i\omega_{\alpha} \overrightarrow{f}_{z} - \left\{ \operatorname{Tr} \right\} \right] \mid {}^{(2)}\overline{\rho} \rangle = \left\{ B \right\} \mid {}^{(0)}\overline{\rho} \rangle \rangle$$
(18)

(note) L'anisotropie provient de la diffusion multiple; elle n'affecte donc pas les cohérences optiques (pas de restitution de cohérence optique par diffusion multiple). L'équation d'ordre l par rapport au laser n'est donc pas modifiée et le terme source des équations d'ordre 2((II,84) ou (III,35)) a la même forme que dans le cas isotrope : la différence vient de $| \stackrel{(0)}{\overline{\rho}} >>$ et non de { B }.

IX-2

 $| \overline{\rho} >>$ représente simultanément les deux niveaux de la transition laser et { B } est l'opérateur de l'espace de Liouville explicité dans (III,35) en fonction de l'opérateur dipolaire électrique \vec{D} (de l'espace des états); $\omega_{\alpha} \not = z$ est mis pour $[\omega_a P_a + \omega_b P_b] \not = z$, P_{α} étant le projecteur sur l'état α . Dans la base | kq >> , (18) s'écrit sous la forme matricielle :

- 282 -

$$\left\{ \left[\Gamma_{I} \right] + \varepsilon \left[\Gamma_{A} \right] + i \left[\omega_{\alpha} \mathcal{J}_{z} \right] - \left[Tr \right] \right\} \left[{}^{(2)}\rho \right] = \left[B \right] \left[{}^{(0)}\overline{\rho} \right]$$
(19)

Nous avons déjà résolu l'équation d'ordre zéro (par rapport au laser) au paragraphe précédent. Nous avons obtenu la solution sous la forme d'un développement au ler ordre par rapport à l'anisotropie :

Dans ces expressions, nous avons négligé le transfert d'alignement du niveau b vers le niveau a, car l'anisotropie est faible et le taux de transfert également (d'ailleurs, pour être rigoureux, il faudrait aussi tenir compte de tous les autres niveaux). Le transfert d'alignement à l'ordre zéro a pu être observé expérimentalement : il est effectivement très faible. Pour en tenir compte, il faudrait, pour le niveau a, ajouter le terme :

En reportant (20) dans l'équation (19), donnant la réponse linéaire, on peut trouver, formellement par itération, la solution isotrope et la solution anisotrope du ler ordre (en ε) :

$$\begin{bmatrix} {}^{(2)}{}^{I}\rho \end{bmatrix} = \left\{ \begin{bmatrix} \Gamma_{I} \end{bmatrix} + i \begin{bmatrix} \omega \end{bmatrix}_{Z}^{J} - \begin{bmatrix} Tr \end{bmatrix} \right\}^{-1} \begin{bmatrix} B \end{bmatrix} \begin{bmatrix} {}^{(0)}{}^{I}\rho \end{bmatrix}$$
(22)

$$\begin{bmatrix} {}^{(2)}A\overline{\rho} \end{bmatrix} = \left\{ \begin{bmatrix} \Gamma_{I} \end{bmatrix} + i \begin{bmatrix} \omega_{\alpha} \mathcal{J}_{z} \end{bmatrix} - \begin{bmatrix} Tr \end{bmatrix} \right\}^{-1} \left\{ \begin{bmatrix} B \end{bmatrix} \begin{bmatrix} {}^{(0)}A\overline{\rho} \end{bmatrix} - \varepsilon R \begin{bmatrix} \Gamma_{A} \end{bmatrix} R^{-1} \begin{bmatrix} {}^{(2)}\overline{\rho} \end{bmatrix} \right\}$$
(23)

(22) n'est autre que la solution habituelle étudiée au chapitre IV. La correction anisotrope (23) contient deux termes. Le premier terme (ici aussi, nous négligeons le transfert dans les corrections d'anisotropie),

$$\begin{bmatrix} {}^{(2)}A_{1}\overline{\rho} \end{bmatrix} = \left\{ \begin{bmatrix} \Gamma_{I} \end{bmatrix} + i \begin{bmatrix} \omega_{\alpha} & J_{z} \end{bmatrix} \right\}^{-1} \begin{bmatrix} B \end{bmatrix} \begin{bmatrix} {}^{(0)}A\overline{\rho} \end{bmatrix}$$
(24)

vient de la correction à l'ordre (0) et s'obtient par les formules habituelles permettant de passer de l'ordre (0) à l'ordre (2). En raison de ce que nous avons dit au paragraphe précédent, ce terme peut être traité comme une excitation anisotrope donnée par l'équation (17). Ce terme sera calculé à partir

IX-B C

(25)

des formules de l'appendice D en prenant la partie anisotrope de (20) pour former $n(k_0,Q_0,k_1)$ (k_0 pair > 0).

- 283 -

Le second terme de (23) provient de l'anisotropie de la relaxation dans l'équation du 2e ordre. C'est ce terme qui différencie l'anisotropie provenant de la relaxation de celle provenant de l'excitation. Sous forme développée, il s'écrit :

$$= -\sum_{k'Q'Q''} e^{i(Q'-Q)\phi} \frac{r_{QQ''}^{(k)}(\theta)}{\Gamma_{\alpha}(k) + iQ\omega_{\alpha}} \frac{\delta_{Q''}^{(k')}r_{Q''Q'}^{(k')}(-\theta)}{\alpha P_{\alpha}(k) + iQ\omega_{\alpha}}$$
(2) I-4

Dans cette expression, $\begin{pmatrix} 2 \\ \rho \\ \alpha' \\ Q' \end{pmatrix}$ est calculé à partir du terme source isotrope n : pour les termes de fréquence nulle, il faut utiliser les expressions (IV,13 et 14).

C - ESTIMATION EXPERIMENTALE DE L'ORDRE DE GRANDEUR DE L'ANISOTROPIE

Dans les deux premiers paragraphes, nous déterminons la méthode de mesure. Nous rassemblerons les résultats numériques au § 3. Au § 4, nous évaluerons l'effet de l'anisotropie sur les mesures de temps de relaxation réalisées par DECOMPS.

1) Méthode de mesure de Γ_0^{20} (effet Hanle en l'absence de laser)

L'expérience décrite au paragraphe A permet de mesurer précisément Γ_0^{20} et, par là, permet d'avoir un ordre de grandeur de l'anisotropie, si l'on admet que les autres éléments de la matrice $[\Gamma_A]$ sont du même ordre de grandeur.

Dans cette expérience le champ magnétique (Oz) est perpendiculaire à l'axe de la cellule (Ox). On détecte la lumière de fluorescence émise suivant Oz avec les polarisations \vec{u}_x et \vec{u}_y . Le taux d'anisotropie obtenu en mesurant la hauteur de l'effet Hanle est donné par la formule (V,26) :

$$R_{\alpha g}^{(0)} = \left[\frac{\ell_{\alpha g}(\vec{u}_{y}) - \ell_{\alpha g}(\vec{u}_{x})}{\ell_{\alpha g}(\vec{u}_{y}) + \ell_{\alpha g}(\vec{u}_{y})} \right]_{H=0} = \frac{\ell_{\alpha g}(\vec{u}_{y})_{H=0} - \ell_{\alpha g}(\vec{u}_{y})_{H=\infty}}{\ell_{\alpha g}(\vec{u}_{y})_{H=\infty}} = \frac{(-)^{J_{\alpha} + J_{g} + 1} \left\{ 2 - 1 - 1 \\ J_{g}J_{\alpha}J_{\alpha} \right\}}{\frac{1}{3\sqrt{2J_{\alpha} + 1}} \alpha \rho_{0}^{0} + \frac{1}{\sqrt{6}} (-)^{J_{g} + J_{\alpha} + 1} \left\{ 2 - 1 - 1 \\ J_{g}J_{\alpha}J_{\alpha} \right\}} \alpha \rho_{0}^{2}$$
(26)

En utilisant la formule (16) et en ne gardant que le premier ordre par rapport à l'anisotropie, c'està-dire en négligeant ρ_0^2 devant ρ_0^0 , on obtient ($\phi = 0$, $\theta = \pi/2$; pour la matrice de rotation, voir Appendice A) :

$$R_{\alpha g}^{(0)} = -3 \sqrt{2J_{\alpha}+1} (-)^{J_{g}+J_{\alpha}} \begin{cases} 2 & 1 & 1 \\ J_{g}J_{\alpha}J_{\alpha} \end{cases} \frac{\alpha \rho_{2}^{2}}{\alpha \rho_{0}^{0}} = \frac{3}{2} \sqrt{\frac{3}{2}} \sqrt{2J_{\alpha}+1} (-)^{J_{g}+J_{\alpha}} \begin{cases} 2 & 1 & 1 \\ J_{g}J_{\alpha}J_{\alpha} \end{cases} \frac{\alpha \Gamma_{0}^{2 \, 0}}{\Gamma_{\alpha}(2)}$$
(27)

La mesure de $R_{\alpha g}^{(0)}$ nous donne un ordre de grandeur de $\frac{\alpha Q}{\Gamma_{\alpha}(k)}$ c'est-à-dire l'ordre de grandeur de la correction $(2)A_2\overline{\rho}$ relativement à $(2)I_{\overline{\rho}}$ (équ. (25)). Pour le niveau 2p, nous avons utilisé la raie 6.096 Å (J=2 + J=1), ce qui donne :

$$\frac{a^{\Gamma_{0}^{20}}}{\Gamma_{a}(2)} = -\frac{4}{3} \sqrt{\frac{10}{7}} R_{6.096} \simeq -1.6 R_{6.096}$$
(28)

Pour le niveau 3s₂ nous avons utilisé la raie 5.434 Å (J=1 → J=1) :

$$\frac{b^{\Gamma_0^{20}}}{\Gamma_b(2)} = \frac{4\sqrt{2}}{3} R_{5.434} = 1,89 R_{5.434}$$
(29)

2) Méthode de détermination de l'effet de l'anisotropie provenant de l'ordre zéro

Nous venons de voir une méthode permettant d'estimer l'effet relatif de la correction anisotrope à l'équation du second ordre. Cependant, cette mesure n'est pas suffisante pour estimer l'ordre de grandeur de la correction provenant de l'anisotropie à l'ordre zéro (premier terme source de l'équation (23)). En effet, la formule (II,58) montre qu'il faut comparer les quantités :

$$n = n(0,0,1) = \frac{\binom{0}{b}\rho_{0}^{0}}{\sqrt{2J_{b}^{+1}}} - \frac{\binom{0}{a}\rho_{0}^{0}}{\sqrt{2J_{a}^{+1}}} = n_{b} - n_{a}$$
(30)
$$n(k_{0},Q_{0},k_{1}) = (-)^{J_{a}^{+}J_{b}^{+1}} \sqrt{2k_{0}^{+}} \sqrt{2k_{1}^{+}} \left[\begin{cases} k_{0}1 \ k_{1} \\ J_{a}J_{b}J_{b} \end{cases} & \binom{0}{b}\rho_{Q_{0}}^{k_{0}} + (-)^{k_{0}^{+}k_{1}} \left\{ k_{0}^{1} \ k_{1} \\ J_{b}J_{b}J_{a} \end{cases} & \binom{0}{a}\rho_{Q_{0}}^{k_{0}} \right]$$

Dans certaines conditions expérimentales, il se peut que l'alignement ${}^{(0)}_{\alpha}\rho_0^2$ du niveau α soit négligeable devant la population de ce niveau $n_{\alpha} = \frac{1}{\sqrt{2J_{\alpha}+1}} \quad {}^{(0)}_{\alpha}\rho_0^0$, mais qu'il ne le soit pas devant la différence de population $n = n_b - n_a$.

En mesurant le taux d'anisotropie défini en (26), avec l'approximation (27), sur deux raies de fluorescence b → g et a → f issues respectivement des niveaux supérieur et inférieur de la transition laser, nous pouvons déterminer le rapport de l'alignement (en champ nul) à la population

- 284 -

pour chacun des niveaux (en utilisant (7), on a : $\rho_2^2 = R_{20}^{(2)}(0, \frac{\pi}{2}, 0) \sigma_0^2$) :

$$\frac{\langle 0 \rangle}{n_{\alpha}}^{2} = -\frac{2}{3} \sqrt{\frac{2}{3}} (-)^{J_{\alpha}^{+}J_{\gamma}} \begin{cases} 2 \ 1 \ 1 \\ J_{\gamma}J_{\alpha}J_{\alpha} \end{cases}^{-1} R_{\alpha\gamma}^{(0)} \qquad (\alpha = a \text{ ou } b) \end{cases}$$
(31)
$$\gamma = f \text{ ou } g)$$

Montrons maintenant qu'en comparant l'effet du laser sur les deux niveaux, on peut obtenir les rapports n_a/n et n_b/n. Pour chacun des deux niveaux, on peut mesurer la modification relative d'intensité de la lumière de fluorescence sous l'effet du laser :

$$M_{\alpha\gamma} = \frac{\Delta L_{\alpha\gamma}}{(0)}_{L_{\alpha\gamma}} = \frac{\Delta_{\alpha}\rho_{0}^{0} + 3\sqrt{2J_{\alpha}+1} (-)^{J_{\alpha}+J_{\gamma}+1} \left\{ \begin{array}{c} 2 & 1 & 1 \\ J_{\gamma}J_{\alpha}J_{\alpha} \end{array} \right\} \left[\frac{1}{\sqrt{6}} & \Delta_{\alpha}\rho_{0}^{2} \pm \frac{1}{2}\Delta(\alpha\rho_{2}^{2} + \alpha\rho_{-2}^{2}) \right]}{(0)\rho_{\alpha}\rho_{0}^{0}}$$
(32)

Au dénominateur, on a négligé l'alignement initial devant $\begin{pmatrix} 0 \\ \alpha \end{pmatrix} \rho_0^0$. L'expression de la lumière de fluorescence utilisée est celle obtenue en (V,19); le signe ± correspond aux polarisations $\vec{\lambda} = \vec{u}_y$ ($\phi = 0$) ou $\vec{\lambda} = \vec{u}_x$ ($\phi = \frac{\pi}{2}$).

Si le laser est assez faible (nous l'admettrons, car nous ne calculons qu'un ordre de grandeur), nous pouvons utiliser les expressions du 2e ordre (IV,25) et (IV,26) pour les modifications $\Delta_{\alpha}\rho$. Pour simplifier, nous nous placerons en champ magnétique fort pour éliminer la partie anisotrope provenant de ρ_2^2 . Dans ces conditions, le rapport des modifications relatives s'écrit :

$$\frac{M_{bg}}{M_{af}} = -\frac{\frac{1}{(2J_{b}+1)\Gamma_{b}(0)} + \frac{3}{2\Gamma_{b}(2)}A_{ag}^{b}(2)}{\frac{1}{(2J_{a}+1)\Gamma_{a}(0)}(1 - \frac{\gamma_{ba}}{\Gamma_{b}(0)}) + \frac{3}{2\Gamma_{a}(2)}A_{bg}^{a}(2)(1 - \frac{\gamma_{ba}}{\Gamma_{b}(2)}f_{b}^{a}(b,a,2,1))} - \frac{n_{a}}{n_{b}}}$$
(33)

Les coefficients A sont ceux définis en (V,25) (valeurs numériques, § V-C-4, p. 112). La polarisation du laser utilisée dans cette formule est : $\vec{e} = \vec{u}_y$ (σ rectiligne). Pour les raies 5.434 Å (b = 3s₂, g = 2p₁₀) et 6.096 Å (a = 2p₄, f = 1s₄) effectivement utilisées, on a $J_a=2$, $J_b=J_f=J_g=1$

$$r = \frac{M_{5.434}}{M_{6.096}} = -\frac{5}{3} \frac{\frac{1}{\Gamma_{b}(0)} - \frac{1}{40\Gamma_{b}(2)}}{(1 - \frac{\gamma_{ba}}{\Gamma_{b}(0)}) \frac{1}{\Gamma_{a}(0)} + \frac{7}{40\Gamma_{a}(2)}} \frac{n_{a}}{n_{b}} = K(P, I_{c}) \frac{n_{a}}{n_{b}}$$
(34)

- 286 -

Comme DECOMPS a montré que l'on pouvait le faire dans ce cas particulier, nous avons négligé le transfert d'alignement. Le coefficient K(P, I_c) dépend de la pression et du courant de décharge par l'intermédiaire des coefficients de relaxation $\Gamma_{\alpha}(0)$ et $\Gamma_{\alpha}(2)$. En utilisant les valeurs obtenues par DECOMPS pour ces quantités, on peut donc déduire le rapport n_a/n_b de la mesure de r. On obtient alors :

$$\frac{n}{n_{a}} = \frac{K(P, I_{c})}{r} - 1 \qquad \qquad \frac{n}{n_{b}} = 1 - \frac{r}{K(P, I_{c})}$$
(35)

et par conséquent (pour les raies 6.096 et 5.434) :

$$\frac{{}^{(0)}\sigma^2}{n} = -\frac{2}{3}\sqrt{\frac{2}{3}} \left(-\right)^{J_a+J_f} \left\{ \begin{cases} 2 \ 1 \ 1 \\ J_f J_a J_a \end{cases} \right\}^{-1} \frac{R_{af}^{(0)}}{\frac{K}{r} - 1} = \frac{20}{3}\sqrt{\frac{2}{7}} \frac{R_{6.096}^{(0)}}{\frac{K}{r} - 1}$$
(36-a)

$$\frac{{}^{(0)}\sigma_0^2}{n} = -\frac{2}{3}\sqrt{\frac{2}{3}} \left(-\right)^{J_b+J_g} \begin{cases} 2 \ 1 \ 1 \\ J_g J_b J_b \end{cases}^{-1} \frac{R_{bg}^{(0)}}{1 - \frac{r}{K}} = -4\sqrt{\frac{2}{3}} \frac{R_{5.434}^{(0)}}{1 - \frac{r}{K}}$$
(36-b)

REMARQUE.

Pour les niveaux $J \ge 2$, l'anisotropie couple également $\sigma_0^0 \ge \sigma_0^4$. Ceci donne en champ quelconque des termes sources $n(4,Q_0,3)$ qui, ≥ 1 'ordre (2), affectent l'alignement. Or, nous n'avons aucun moyen de mesurer σ_0^4 . Cependant, puisque la cause essentielle d'anisotropie est la diffusion multiple, on peut se persuader que cette grandeur est négligeable. En effet, pour qu'un atome possède un moment tensoriel d'ordre 4, il faut successivement qu'il absorbe un photon qui lui donne de l'alignement, qu'il retombe dans le niveau métastable (puisqu'il s'agit ici du 2p₄) en gardant son alignement, puis qu'il absorbe un nouveau photon qui transforme l'alignement en σ_0^4 . Le rendement d'un tel circuit est sûrement très faible et, de plus, l'alignement a sûrement le temps d'être détruit pendant le séjour dans le métastable.

3) Résultats expérimentaux (montage type II, champ perpendiculaire à l'axe)

Pour chaque valeur de la pression et de la décharge, nous avons enregistré, en l'absence de laser, l'intensité des raies 6.096 Å ($2p_4 \rightarrow 1s_4$) et 5.434 Å ($3s_2 \rightarrow 2p_{10}$) en fonction du champ magnétique de façon à déterminer sur chaque raie la hauteur relative de l'effet Hanle (qui donne le taux d'anisotropie R⁽⁰⁾ défini en (26)). Ensuite, en champ magnétique fort, nous avons mesuré simultanément sur les deux raies la modification produite par l'irradiation laser à 6.328 Å (polarisation σ rectiligne). . - 287 -

IX-C

Dans le tableau IX-1, nous donnons un certain nombre de résultats expérimentaux. On peut constater que l'anisotropie est toujours faible, $\leq 2\%$. D'autre part, on voit qu'elle dépend de la diffusion multiple selon la description faite au § A : pour le niveau 2p., l'anisotropie dépend de la pression et de la décharge; elle s'annule quand la diffusion multiple devient faible. Pour le niveau 3s₂, l'anisotropie ne dépend pratiquement que de la pression partielle de néon; elle s'annule quand la diffusion multiple est totalement saturée (néon pur).

TABLEAU IX-1

			3s ₂			2рц							
%Ne	P (Torr)	i _c (mA)	-R _b ⁽⁰⁾ .(%)	$\frac{-{}_{b}\Gamma_{0}^{20}}{\Gamma_{b}(2)}$ (%)	^М ъд (%)	R(0) Ra (%)	$\frac{-a\Gamma^{20}}{\Gamma_{a}(2)}$ (%)	^M af (%)	-r= $\frac{-M_bg}{M_af}$	-к	n <u>a</u> n b	$\frac{\binom{0}{a^{\sigma}}^{2}}{n}$ (%)	$\frac{\binom{0}{b^{0}}^{2}}{n}$ (%)
100	3,4	15			84	0,33	0,52	-2,35	35,7	2,09	17,1	-1,23	
		6			66	0,25	0,40	-2,05	32,2	2,57	12,5	-0,97	
		1,8			41	0,17	0,27	-1,95	21	3,0	7,0	-0,70	
	2	10			50	0,38	0,60	-1,97	25,4	2,93	8,67	-1,52	
		5,1				0,25	0,40	-1,66					
		2,2			28	0,12	0,19	-1,32	21,2	3,7	5,73	-0,51	
	1	10			26	0,27	0,43	-1,46	17,8	3,91	4,55	-1,23	
_		[`] 3			16	< <u>0</u> ,02	<0,03	-0,8	20	4,51	4,43		
20	2,75	10	0,12	0,23	-2,51	0,16	0,25	1,53	1,64	3,1	0,53	0,63	0,84
	-	6	0,11	0,21	-3,35	0,15	0,24	2,05	1,63	3,78	0,43	0,41	0,64
		3,1	0,11	0,21	-3,57	0,10	0,16	2,41	1,48	4,39	0,34	0,18	0,55
	1,75	10	0,25	0,47	-3,75	0,13	0,20	2,95	1,27	3,86	0,33	0,22	1,21
		3,2	0,20	0,38	-5,03	0,05	0,08	4,33	1,16	4,96	0,23	0,05	0,86
	1	10	0,47	0,88	-4,58			4,82	0,95	4,7	0,20		1,91
		3,9	0,43	0,81	-5,48			5,88	0,93	5,43	0,17		1,69
10	1	10	0,87	1,64	-3,94		·	6,23	0,63	4,98	0,13		3,25
		4	0,83	1,56	-4,74			7,37	0,64	5,63	0,11		3,05
						1							

4) Effet de l'anisotropie sur les expériences réalisées avec un champ magnétique axial (cas des expériences de DECOMPS)

Le cas est particulièrement simple car le champ est parallèle à l'axe de symétrie de la relaxation : $\overline{\sigma}$ et $\overline{
ho}$ coıncident et il n'y a pas de rotation à faire dans les formules (16) et (25). IX-C

A l'ordre zéro, le seul terme anisotrope est (comme précédemment, nous négligeons les ordres tensoriels supérieurs à 2. Cf. remarque du § C-2) :

A l'ordre 2, la correction anisotrope comprend un premier terme $\begin{pmatrix} 2 \\ \alpha \end{pmatrix}$ provenant de l'anisotropie à l'ordre 0 (cf. (24)) et obtenu en reportant (37) dans les équations de l'appendice D, et un second terme provenant de l'équation du second ordre qui s'écrit dans ce cas (cf. (25)) :

Dans le cas d'<u>une excitation de polarisation rectiligne σ </u> $(|e_{\pm 1}| = \frac{1}{\sqrt{2}})$, la solution isotrope ne contient que $I\overline{\rho}_0^0$, $I\overline{\rho}_0^2$ et $I\overline{\rho}_{\pm 2}^2$. (38) ne donne alors que les termes :

De même, on peut voir avec les formules de l'appendice D que l'anisotropie d'ordre zéro (37) ne donne que $\binom{(2)A_1}{\alpha \rho_0}$, $\binom{(2)A_1}{\alpha \rho_0}$ et $\binom{(2)A_1}{\rho_{\pm 2}}$ (plus des grandeurs tensorielles d'ordre $k_2 = 4$ qui ne sont pas détectables).

On voit que l'anisotropie ne crée pas d'orientation dans ce cas (ceci est conforme aux raisonnements de symétrie énoncés par LOMBARDI (⁴¹)). De plus, la seule grandeur transversale est $\overline{\rho}_{\pm 2}^2$: il en résulte que l'effet Hanle n'est pas déformé, il reste Lorentzien et sa largeur donne $\Gamma_{\alpha}(2) = {}_{\alpha}\Gamma_{2}^{22}$. Par contre, le taux d'anisotropie en champ nul (V,26) et la grandeur F (V,23) sont altérés, car ces grandeurs sont des fonctions homographiques des trois observables ρ_{0}^{0} , ρ_{0}^{2} et ρ_{2}^{2} : On peut s'attendre à ce que le rapport $\left[\frac{\Gamma_{\alpha}(2)}{\Gamma_{\alpha}(0)}\right]^{*}$ mesuré, varie suivant la raie de fluorescence observée. Nous allons le montrer.

Pour cela, posons, pour $(k_2=0, Q_2=0)$, $(k_2=2, Q_2=0)$ et $(k_2=2, Q_2=2)$:

(V,24) et (V,27) s'écrivent alors :

$$F(b,g,g') = \frac{1 - A_{ag}'^{b}(2) \frac{\Gamma_{b}(0)}{\Gamma_{b}(2)} (1 + \varepsilon_{0}^{2} - \varepsilon_{0}^{0})}{1 - A_{ag}'^{b}(2) \frac{\Gamma_{b}(0)}{\Gamma_{b}(2)} (1 + \varepsilon_{0}^{2} - \varepsilon_{0}^{0})}$$
(41)

IX-C

(42)

$$R'_{bg} = \frac{A'_{ag}^{b}(2) (1 + \varepsilon_{2}^{2})}{\frac{2}{3} \frac{\Gamma_{b}(2)}{\Gamma_{b}(0)} (1 + \varepsilon_{0}^{0}) + \frac{1}{3} A'_{ag}^{b}(2) (1 + \varepsilon_{0}^{2})}$$

Les valeurs de $\left[\frac{\Gamma_b(2)}{\Gamma_b(0)}\right]^*$ mesurées par la méthode de DECOMPS, en ignorant l'ani-

sotropie, sont donc :

 $\left[\frac{\Gamma_{b}(2)}{\Gamma_{b}(0)}\right]_{F}^{*} = \frac{\Gamma_{b}(2)}{\Gamma_{b}(0)} (1 + \varepsilon_{0}^{0} - \varepsilon_{0}^{2}) \quad (indépendent des raies de fluorescence utilisées)$ (43)

 $\left[\frac{\Gamma_{b}(2)}{\Gamma_{b}(0)}\right]_{R_{bg}^{*}}^{*} = \frac{\Gamma_{b}(2)}{\Gamma_{b}(0)} (1 + \varepsilon_{0}^{0} - \varepsilon_{2}^{2}) + \frac{1}{2} A_{ag}^{*b}(2) (\varepsilon_{0}^{2} - \varepsilon_{2}^{2}) \quad (dépend de la raie b \neq g utilisée)$ (44)

On voit donc que les différentes déterminations de $\left[\frac{\Gamma_b(2)}{\Gamma_b(0)}\right]^*$ ne sont pas identiques.

Pour évaluer les corrections, on peut utiliser les résultats numériques obtenus au paragraphe C-3. Seule la quantité $\delta_0^{22} = \Gamma_0^{22} - \Gamma_2^{22}$ n'a pas été mesurée : nous admettrons qu'elle est du même ordre de grandeur que Γ_0^{20} . Nous ne donnerons pas ici le détail du calcul. Les résultats sont les suivants:

Dans le néon pur et dans le mélange à 20% de Ne, les corrections sont inférieures à 1% et sont donc totalement inobservables, d'autant plus que l'anisotropie provenant du niveau 2p. (la seule qui intervient dans le néon pur) est éliminée par l'extrapolation à intensité de décharge nulle (plus de diffusion multiple). Dans le mélange à 10% de néon (1 Torr), les corrections sont de l'ordre de 1%; elles sont encore difficiles à déceler expérimentalement, mais l'erreur systématique commence à être appréciable.

Dans le tableau IX-1, on voit que l'anisotropie du niveau $3s_2$ croît lorsque la pression partielle de néon décroît. On peut donc s'attendre à ce que les écarts entre les différentes déterminations (43) et (44) deviennent mesurables à très faible pression partielle de néon (diffusion multiple partielle) : il serait donc intéressant d'étudier ces grandeurs en détail, dans un mélange contenant environ 1% de néon ^(note). Par contre, on peut être sûr que l'effet de l'anisotropie est négligeable sur les déterminations de $\Gamma_{3s_2}(0)$ et $\Gamma_{3s_2}(2)$ réalisées à diffusion multiple saturée (valeur "asymptotique" suivant la terminologie de DECOMPS).

(note) Le calcul montre que l'anisotropie du $3s_2$ peut être sensible, en particulier sur la mesure de $\Gamma_{2p_4}(0)$ avec la raie laser 6.328 Å ($3s_2 \neq 2p_4$) et sur la mesure de $\Gamma_{2p_2}(0)$ et $\Gamma_{3s_2}(0)$ avec la raie 6.401 Å ($3s_2 \neq 2p_2$)

5) Conclusion

L'estimation de l'effet de l'anisotropie, que nous avons faite dans le paragraphe précédent, montre qu'il est normal que DECOMPS n'ait pu la déceler ^(*). L'anisotropie de la relaxation produit certainement une erreur négligeable sur la plupart de ses résultats car l'anisotropie du niveau 2p4 est éliminée par l'extrapolation à intensité de décharge nulle, et celle du niveau $3s_2$ est négligeable pour toutes les mesures faites à diffusion multiple saturée (P_{Ne} > 0,2 Torr).

Dans les expériences que nous avons réalisées avec le montage du type II (cf. Ch. VI, § D et F), l'effet de l'anisotropie est très difficile à calculer, car le champ magnétique est à 45° de l'axe de symétrie de la relaxation. Il en résulte en particulier un <u>mélange de l'alignement et</u> <u>de l'orientation</u>. La complication du calcul est encore accrue par l'utilisation d'une polarisation modulée. Nous n'avons donc pas pu estimer les corrections. Cependant, quels que soient les effets de l'anisotropie, on peut certainement les négliger dans la plupart des cas (pour les mêmes raisons que dans les expériences de DECOMPS). Seul le mélange à 1% de néon peut conduire à une erreur de quelques pour cent.

(*) De plus, les cellules utilisées par DECOMPS étaient plus courtes que celles utilisées pour les mesures du tableau IX-1 : l'anisotropie de diffusion multiple était donc plus faible.

CONCLUSION GENERALE

Au début de ce mémoire, nous avons mis en place un formalisme mathématique qui permet de tenir compte de processus de relaxation complexes, dans le calcul de l'interaction atomesfaisceau laser en présence d'un champ magnétique. Ce formalisme tient compte en détail :

- de la <u>relaxation des grandeurs atomiques</u> par les collisions désorientantes et les collisions de quenching
- de la réabsorption des raies de fluorescence (diffusion multiple)
- du transfert des grandeurs atomiques d'un niveau à l'autre par émission spontanée.

Il tient compte également :

- de la destruction des grandeurs optiques par collisions
- du déphasage de ces grandeurs, qui peut également résulter des collisions
- de l'effet de la diffusion multiple et des collisions sur la distribution de vitesse des atomes excités.

Ce formalisme est un cadre assez général qui permet d'englober de très nombreux cas expérimentaux; cependant, pour simplifier, nous avons fait un certain nombre d'hypothèses restrictives :

- Nous avons supposé la relaxation isotrope. Nous avons cependant donné au chapitre IX les éléments permettant le traitement d'une petite anisotropie provenant de la décharge. Par contre, cette hypothèse exclut la possibilité d'une étude quantitative des relaxations en présence d'un faisceau laser monomode qui ne pompe que les atomes d'une seule classe de vitesse.

- Dans toutes les applications (mais pas dans le formalisme général du chapitre II), nous avons supposé la <u>largeur Doppler très grande devant la largeur naturelle</u> de la raie et devant tous les coefficients de relaxation ($\Delta v >> \Gamma'_{ab}$, $\Gamma'_{\alpha}(k)$...). Cette hypothèse exclut le cas des très fortes pressions (Γ'_{ab} grand) et des raies laser infrarouge (Δv petit). Les limites de validité des résultats dépendent des grandeurs observées : pour la réponse linéaire, par exemple, seuls comptent les coefficients de relaxation des grandeurs atomiques et les limites de validité de la théorie sont larges (par exemple 20 Torr pour une raie laser visible ou quelques Torr pour la raie 3,39 μ). Par contre, la croissance rapide des coefficients de relaxation avec la pression impose des limites beaucoup plus strictes à la validité de certaines approximations faites lors de l'étude des effets non linéaires (par exemple 2 Torr pour les raies visibles).

- Nous avons effectué un calcul de <u>perturbation</u> en fonction des puissances successives du champ électrique du faisceau laser. Ceci restreint la validité des résultats aux cas des très faibles intensités laser. En particulier, nous avons pu montrer expérimentalement (§ VIII-F-3-b) que même les résultats du 4e ordre ne permettent pas une étude quantitative des phénomènes pour une intensité laser quelconque.

Résultats théoriques et applications expérimentales

L'étude de la réponse linéaire (2e ordre de perturbation) a été principalement centrée sur l'<u>effet Hanle</u> qui apparaît tout à fait identique à celui que l'on obtient avec des sources lumineuses conventionnelles. Cependant, cette étude a permis de mettre au point des méthodes expérimentales, particulièrement adaptées au cas du pompage par un laser et qui ont permis la mesure de nombreux temps de relaxation. Elle est à la base de toutes les mesures réalisées par DECOMPS et des mesures de temps de relaxation de l'orientation des niveaux 3s₂ et 2p₄, relatées dans ce mémoire. Signalons au passage que ces mesures, dont l'accord n'est pas parfait avec celles de DECOMPS en ce qui concerne les durées de vie, mettent en évidence les difficultés expérimentales qui limitent la précision (extrapolation successive à intensité de laser nulle, puis à intensité de décharge nulle; complexité des phénomènes intervenant dans les décharges).

Nous avons pu mettre en évidence théoriquement et expérimentalement la <u>modulation</u> de la lumière de fluorescence à la fréquence de battement entre les modes du laser.

L'étude des saturations (au 4e ordre de perturbation) a permis de dégager l'origine physique des résonances observées expérimentalement (sur les grandeurs longitudinales) lorsque l'écart Zeeman est égal à l'écart de fréquence entre modes : nous avons montré qu'il fallait distinguer :

- 1) Un <u>effet de population</u> : la composante σ^+ d'un mode et la composante σ^- d'un autre créent chacune un "trou" dans la distribution de vitesse de l'inversion de population et la saturation augmente lorsque les "trous" se recouvrent.
- 2) Un <u>effet de cohérence Zeeman</u> : l'action simultanée des modes (v,σ^*) et (μ,σ^-) crée au second ordre de l'alignement transversal modulé à la fréquence $\omega_v - \omega_\mu$ et résonnant lorsque l'écart Zeeman est égal à cette fréquence. Une nouvelle interaction avec les modes (λ,σ^-) et (κ,σ^+) tels que $\omega_v - \omega_\mu + \omega_\lambda - \omega_\kappa = 0$ permet de "démoduler" ce terme et d'obtenir au 4e ordre des grandeurs longitudinales présentant une résonance en fonction du champ magnétique.

Les résonances du ler type ont une largeur double de la largeur naturelle de la raie (inverse du temps de relaxation des "cohérences optiques"). Cette largeur est très affectée par les collisions : dans les cas expérimentaux utilisés, elle est supérieure à l'écart entre modes et toutes les résonances du premier type se recouvrent et ne sont pas résolues. <u>Les résonances observées expérimentalement provien</u>- nent donc uniquement de l'effet de cohérence Zeeman (la largeur de ces résonances est proche de la largeur de l'effet Hanle, c'est-à-dire de l'inverse du temps de relaxation de l'alignement).

L'expérience montre que la synchronisation des modes ("mode locking") a un effet considérable sur les résonances latérales, alors qu'elle n'en a aucun sur la résonance en champ nul. Notre calcul nous a permis de comprendre ce phénomène : en effet, <u>la résonance en champ nul</u> ne fait intervenir que deux modes (termes de la forme $| \mathcal{E}^{\vee} e^{i(\omega_{\vee}t+\phi_{\vee})}|^2$. $| \mathcal{E}^{\kappa} e^{i(\omega_{\kappa}t+\phi_{\kappa})}|^2$). Elle ne dépend pas de <u>la phase relative des modes</u>. Par contre, <u>les résonances en champ non nul</u> (termes de la forme $\mathcal{E}^{\vee *} \mathcal{E}^{\mu} \mathcal{E}^{\lambda^*} \mathcal{E}^{\kappa} e^{i(\phi_{\vee}-\phi_{\mu}+\phi_{\lambda}-\phi_{\kappa})}$, avec $\omega_{\nu}-\omega_{\mu}+\omega_{\lambda}-\omega_{\kappa}=0$) <u>dépendent de façon critique de la phase relative des modes</u>. Si le laser a ses modes <u>synchronisés</u> (c'est-à-dire tous en phase à intervalles de temps réguliers), tous les termes subsistent et l'on montre que les résonances latérales sont du même ordre de grandeur que celles en champ nul. <u>Si les modes sont désynchronisés</u> (phases aléatoires), <u>les résonances</u> <u>latérales deviennent nettement plus faibles</u> car les termes faisant intervenir plus de deux modes disparaissent. Ce comportement prouve, de façon indirecte, que la largeur naturelle de la raie est supérieure à l'écart entre modes, ce qui permet à deux modes voisins d'interagir avec les mêmes atomes. S'il n'en était pas ainsi, on aurait forcément $\nu = \kappa$ et $\mu = \lambda$ dans les raisonnements ci-dessus : les résonances seraient alors toutes indépendantes de la phase des modes et seraient toujours d'amplitude comparable.

Nous avons montré, théoriquement et expérimentalement, que dans un certain nombre de cas (non seulement le cas où l'un des niveaux est un niveau J = 0), on peut attribuer les résonances observées à l'un seulement des deux niveaux, ce qui permet de mesurer son <u>facteur de Landé</u>. Nous avons effectué cette mesure pour quelques niveaux du néon.

Tous les résultats précédents restent valables lorsque l'onde laser est stationnaire, à condition que les modes soient nombreux. Par contre, avec un laser monomode, on observe sur la lumière de fluorescence des résonances de saturation analogues au "Lamb dip", c'est-à-dire provenant du caractère stationnaire du faisceau laser.

Enfin, nous avons montré que notre formalisme permet tout aussi bien de calculer la puissance émise par un laser (en particulier de déterminer la forme de "Lamb dip"). Nous obtenons alors une formule qui généralise celles obtenues par de nombreux auteurs, en y incluant simultanément l'effet de la structure Zeeman des niveaux et l'effet de tous les processus de relaxation envisagés. A cette occasion, nous avons démontré la grande importance de la diffusion multiple des raies optiques comme phénomène de thermalisation des vitesses atomiques.

Prolongements envisagés sur le plan théorique et sur le plan expérimental

Sans parler des nombreuses possibilités offertes par les techniques présentées ici, en ce qui concerne la mesure des temps de relaxation et des sections efficaces de collisions, nous pensons qu'une étude plus approfondie de l'anisotropie de la relaxation serait utile. Dans ce domaine, l'utilisation d'un laser monomode, permettant de ne pomper que les atomes d'une certaine classe de vitesse, semble d'un très grand intérêt.

En ce qui concerne les effets non linéaires, notre méthode de perturbation a permis de comprendre l'origine physique des phénomènes observés, mais elle est insuffisante pour une étude quantitative. Le développement de nouvelles méthodes de calculs, valables quelle que soit la puissance du laser, est donc nécessaire. Ce travail a été entrepris par M. DUCLOY : les résultats théoriques déjà obtenus ont été parfaitement confirmés par l'expérience et laissent espérer un développement très intéressant des recherches dans ce domaine.

- 294 -