

ÉLECTRONIQUE QUANTIQUE. — *Influence de la dégénérescence des niveaux sur les intensités des composantes d'effet de recul en spectroscopie de saturation.* Note (*) de Jacques Bordé et Christian Bordé, présentée par M. Alfred Kastler.

On calcule les intensités relatives des composantes du doublet d'effet de recul en spectroscopie de saturation. On montre qu'elles dépendent de façon importante de la polarisation relative des faisceaux sonde et de saturation dans le cas des transitions $\Delta J \neq 0$. Cette propriété peut être mise à profit pour la suppression de l'un des pics pour les transitions $J = 0 \leftrightarrow J = 1$ et $J = 1/2 \leftrightarrow J = 3/2$.

A theory is presented for the intensities of the recoil components in saturation spectroscopy. We show that they depend strongly upon the relative polarizations of the saturation and probe beams in the case of $\Delta J \neq 0$ transitions. This property may be used to suppress one of the peaks in $J = 0 \leftrightarrow J = 1$ and $J = 1/2 \leftrightarrow J = 3/2$ transitions.

Les théories précédentes ⁽¹⁾ du dédoublement des raies d'absorption saturée par effet de recul ne prennent en considération ni la dégénérescence des niveaux ni les propriétés de polarisation du rayonnement laser. L'influence de ces deux facteurs sur les intensités relatives des deux composantes est exposée dans cette Note et peut être considérable dans certains cas, voire même utilisée pour supprimer une des deux composantes.

Dans la base standard des vecteurs \mathbf{u}_q ($q = 0, \pm 1$) nous écrivons la composante complexe caractérisant un champ électromagnétique polarisé sous la forme

$$(1) \quad E_q = E_q^0 U_q(\mathbf{r}) \exp [i(\omega_q t - \mathbf{k}_q \cdot \mathbf{r} + \varphi_q)],$$

où on a explicité l'amplitude, la structure géométrique du faisceau et la phase. A ce champ correspond un hamiltonien d'interaction dipolaire électrique V_q :

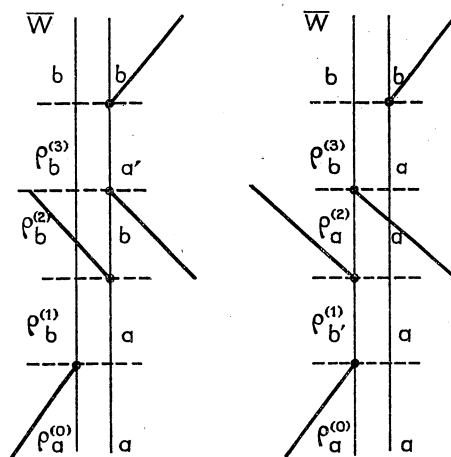
$$(2) \quad V_q = -\frac{1}{2} [\mu_q E_q^* + (-1)^q \mu_{-q} E_q],$$

où μ_q représente la composante irréductible q de l'opérateur moment dipolaire μ_{op} . Nous ajouterons le symbole + ou - sur l'indice q pour indiquer si les champs sont relatifs à l'onde saturante ou à l'onde sonde. Pour simplifier, nous nous limiterons dans cette Note au cas de deux champs polarisés linéairement ou circulairement de même fréquence ω et de sens de propagation opposés; l'axe de quantification est choisi pour ne pas avoir de cohérences Zeeman créées par le champ de saturation et le champ sonde est éventuellement décomposé en ondes circulaires q_i^- . L'hamiltonien total d'interaction est alors :

$$V = V_{q+} + \sum_i V_{q_i^-}.$$

Cet hamiltonien d'interaction est introduit dans l'équation d'évolution de la matrice densité moléculaire ρ et est traité de façon perturbative. La puissance moyenne absorbée \bar{W} , s'obtient en calculant la correction du troisième ordre à la matrice densité, $\rho^{(3)}$, puis en projetant sur le champ la contribution du troisième ordre à la polarisation électrique macroscopique du milieu absorbant. Le calcul de la forme de raie se fait donc en considérant quatre interactions avec le champ (trois pour obtenir $\rho^{(3)}$ à partir de $\rho^{(0)}$, puis une pour obtenir \bar{W} à partir de $\rho^{(3)}$). Or l'hamiltonien d'interaction avec le champ est une somme

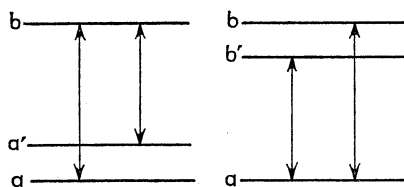
d'opérateurs de perturbation (il y a au moins quatre termes dans V); il s'ensuit que le calcul de \overline{W} peut être décomposé en une somme de termes obtenus en considérant pour chacune des quatre interactions avec le champ un des opérateurs de l'hamiltonien d'interaction. Parmi tous ces termes, il n'y en a que deux (et leurs complexes conjugués) qui décrivent l'absorption saturée et qui ne sont ni nuls ni négligeables après intégration sur le temps, sur l'espace et sur la distribution de vitesses des molécules. Ces deux termes peuvent être représentés [(2), (3)] par les diagrammes 1 et 2 (on suppose $E_a < E_b$).



A chaque vertex correspond une interaction avec un terme de V . Le terme de V considéré est :

- un terme de V_{q+} si la ligne aboutissant au vertex vient de la gauche;
- un terme de $\sum_i V_{qi}$ si elle vient de la droite;
- le terme en $e^{-i\omega t}$ si elle est montante;
- le terme en $e^{+i\omega t}$ si elle est descendante.

Chacune des deux colonnes verticales correspond à un indice de l'élément de matrice de ρ . Le vertex se situe sur la colonne associée à l'indice qui change lorsque V relie $\rho^{(p)}$ à $\rho^{(p+1)}$. Ces deux diagrammes ont une interprétation physique simple : dans le diagramme 1, l'onde saturante induit des transitions entre les états a et b et la modification de population dans l'état b entraîne une variation de l'absorption de l'onde sonde entre les états a' et b (schéma 1). Le diagramme 2 s'interprète de façon analogue mais cette fois l'état commun est l'état inférieur a (schéma 2).



Nous supposons dans la suite que a et a' ainsi que b et b' ont la même énergie. Les signaux correspondant aux schémas 1 et 2 ont des fréquences légèrement différentes à cause de l'effet de recul [(1), (4)]. Les indices a et b représentent les nombres quantiques

nécessaires pour caractériser les états : pour le problème qui nous intéresse, nous les expliciterons sous la forme $\gamma_a J_a M_a$ et $\gamma_b J_b M_b$; J est associé au moment angulaire total et M à sa projection sur l'axe u_0 . Les $2J+1$ états ont la même énergie et a' et b' ne diffèrent des états a et b que par les valeurs de M . Les autres nombres quantiques sont regroupés dans γ .

Chaque interaction avec le champ donne lieu à un élément de matrice de l'opérateur moment dipolaire. Il y a donc, pour chaque diagramme, un produit de quatre éléments de matrice qui vient en facteur de la forme de raie \mathcal{J} . L'intensité du signal est obtenue en sommant sur toutes les valeurs de M . Ceci est fait en utilisant le théorème de Wigner-Eckart pour l'opérateur moment dipolaire :

$$I_1 = \mathcal{J}_b(\omega - \omega_{ba} + \delta) \frac{|\langle \gamma_a J_a \| \mu \| \gamma_b J_b \rangle|^4}{16(2J_b + 1)^2} \sum_i (E_{q_i^+}^0)^2 (E_{q_i^-}^0)^2 \\ \times \sum_{M_a, M_a', M_b} \langle J_a 1 M_a' q_i^- | J_b M_b \rangle^2 \langle J_a 1 M_a q^+ | J_b M_b \rangle^2, \\ I_2 = \mathcal{J}_a(\omega - \omega_{ba} - \delta) \frac{|\langle \gamma_a J_a \| \mu \| \gamma_b J_b \rangle|^4}{16(2J_b + 1)^2} \sum_i (E_{q_i^+}^0)^2 (E_{q_i^-}^0)^2 \\ \times \sum_{M_a, M_b, M_b'} \langle J_a 1 M_a q_i^- | J_b M_b \rangle^2 \langle J_a 1 M_a q^+ | J_b M_b' \rangle^2.$$

La fonction \mathcal{J}_a ou \mathcal{J}_b inclut l'influence de tous les effets agissant sur la forme de la raie [(4), (5)] (temps de transit, collisions, effet Doppler du second ordre, déplacement δ dû à l'effet de recul,...). Seules les collisions induisant des transitions entre sous-niveaux M ne sont pas considérées. Les sommes de produits de coefficients de Clebsch-Gordan conduisent à des expressions simples pour chaque choix de polarisations. Le catalogue de ces formules fera l'objet d'une publication plus détaillée. L'application des formules démontrées a permis de rendre compte (6) avec succès des intensités expérimentales observées pour les composantes hyperfines dans le cas du méthane (4) et de l'ammoniac (7). Dans cette Note nous nous limiterons aux cas conduisant à des intensités différentes pour les composantes du doublet même lorsque les fonctions \mathcal{J}_a et \mathcal{J}_b sont identiques. Ceux-ci sont obtenus lorsque $\Delta J = \pm 1$ et $q^- \neq q^+$. Les sommes des produits de coefficients de Clebsch-Gordan donnent alors :

(A) cas de deux ondes circulaires identiques : $q^- = -q^+ = \pm 1$:

$$\begin{cases} I_1 = \mathcal{J}_b |\langle \gamma_a J_a \| \mu \| \gamma_b J_b \rangle|^4 \frac{1}{16} (E_{q^+}^0)^2 (E_{q^-}^0)^2 \left[\frac{(J + \Delta J)(2J + 3\Delta J)}{30J(2J - 1)(2J + 1)} \right], \\ I_2 = \mathcal{J}_a |\langle \gamma_a J_a \| \mu \| \gamma_b J_b \rangle|^4 \frac{1}{16} (E_{q^+}^0)^2 (E_{q^-}^0)^2 \left[\frac{(J - \Delta J)(2J - 3\Delta J)}{30J(2J - 1)(2J + 1)} \right], \end{cases}$$

(B) cas de deux ondes rectilignes perpendiculaires : $q^+ = 0$, $q_1^- = -q_2^- = \pm 1$ (l'onde sonde est alors décomposée en deux ondes circulaires opposées) :

$$\begin{cases} I_1 = \mathcal{J}_b |\langle \gamma_a J_a \| \mu \| \gamma_b J_b \rangle|^4 \frac{1}{16} (E_{q^+}^0)^2 (E_{q_1^-}^0)^2 \left[\frac{(J + \Delta J)(6J - \Delta J)}{15J(2J - 1)(2J + 1)} \right], \\ I_2 = \mathcal{J}_a |\langle \gamma_a J_a \| \mu \| \gamma_b J_b \rangle|^4 \frac{1}{16} (E_{q^+}^0)^2 (E_{q_1^-}^0)^2 \left[\frac{(J - \Delta J)(6J + \Delta J)}{15J(2J - 1)(2J + 1)} \right], \end{cases}$$

$$[\Delta J = J_a - J_b = \pm 1; J = \sup(J_a, J_b)].$$

On peut vérifier que I_2 se déduit de I_1 en permutant a et b .

A titre d'exemple, dans le cas de deux polarisations circulaires identiques, le rapport entre les intensités des composantes du doublet, vaut 2,06 pour la composante hyperfine $F = 7 \leftrightarrow F = 6$ de la raie P (7) du méthane à 3,39 μm . Un cas extrême est celui des raies $J = 0 \leftrightarrow J = 1$ ou $J = 1/2 \leftrightarrow J = 3/2$ où l'une des composantes du doublet disparaît. Ces conclusions sont tout spécialement importantes pour la discussion de l'exactitude des étalons optiques de fréquence fondés sur l'absorption saturée, puisqu'on ne pourra compter sur l'égalité approximative des deux composantes des doublets qu'en dehors des cas cités; en particulier ceci pose un problème d'exactitude lors de l'utilisation de la méthode de détection par polarisation lorsque les deux pics ne sont pas résolus⁽⁸⁾. Inversement on a maintenant la possibilité de supprimer l'un des pics d'effet de recul dans certains cas comme celui de la raie $^1S_0 - ^3P_1$ du calcium à 6 573 Å. Par ailleurs, on peut aussi penser à utiliser une modulation de la polarisation du rayonnement pour aider à identifier les valeurs de J correspondant à une résonance d'absorption saturée.

(*) Séance du 3 octobre 1977.

(¹) C. J. BORDÉ, *Comptes rendus*, 283, série B, 1976, p. 181 et références citées.

(²) C. J. BORDÉ, J. L. HALL, C. V. KUNASZ et D. G. HUMMER, *Phys. Rev.*, 14, 1976, p. 236-263.

(³) C. J. BORDÉ, *Comptes rendus*, 282, série B, 1976, p. 341.

(⁴) J. L. HALL, C. J. BORDÉ et K. UEHARA, *Phys. Rev. Letters*, 37, 1976, p. 1339-1342.

(⁵) C. J. BORDÉ, S. AVRILLIER et M. GORLICKI, *J. Phys. Lettres*, 38, 1977, p. 249-252.

(⁶) J. BORDÉ et C. J. BORDÉ, *32th Symposium on Molecular Structure and Spectroscopy*, Columbus, Ohio, U.S.A., 1977

(⁷) M. OUHAYOUN, C. J. BORDÉ et J. BORDÉ, *Molecular Physics*, 33, 1977, p. 597-600.

(⁸) C. WIEMAN et T. W. HÄNSCH, *Phys. Rev. Letters*, 36, 1976, p. 1170.

Laboratoire
de Physique moléculaire
et d'Optique atmosphérique,
Bât. 221,
Campus d'Orsay,
91405 Orsay

et

Laboratoire
de Physique des Lasers,
Université Paris-Nord,
avenue Jean-Baptiste-Clément,
93430 Villetaneuse.