SPECTROSCOPIE. — *Sur les franges de Ramsey en spectroscopie sans élargissement Doppler.* Note (*) de **Christian Bordé,** présentée par M. Alfred Kastler.

Le formalisme de la matrice densité au troisième ordre de perturbation est appliqué à l'étude de la forme des franges de Ramsey en spectroscopie d'absorption saturée et en spectroscopie à deux quanta sans élargissement Doppler. Outre la relaxation, on introduit la géométrie gaussienne des faisceaux laser. On montre l'influence de la courbure et de la phase relative des faisceaux lumineux sur la position des franges.

Third-order line shape theory based on the density-matrix formalism is applied to the study of Ramsey fringes in saturation spectroscopy and in Doppler-free two-photon spectroscopy. Besides relaxation, we introduce the Gaussian structure of the laser beams. We study the influence of the beam curvature and of the relative phase of the light beams on the symmetry of the fringes.

L'application de la technique des franges de Ramsey [1] aux méthodes de spectroscopie sans élargissement Doppler (à deux quanta et par absorption saturée) a récemment été étudiée par Y. V. Baklanov et coll. [[2], [3]]. Nous nous proposons dans cette Note de prolonger cette étude en introduisant en plus de la relaxation une géométrie plus réaliste des faisceaux laser et surtout en considérant de plus près l'influence de la phase relative des différents faisceaux.

Le calcul de la forme de raie dans chaque cas est une application naturelle du formalisme et de la technique diagrammatique que nous avons développés précédemment pour l'étude de l'élargissement dû au temps fini de traversée du faisceau [[4], [5]]. Considérons tout d'abord le cas de la spectroscopie à deux quanta sans élargissement Doppler. Les diagrammes correspondants ont été donnés dans une Note précédente [5] dont nous conserverons les notations. Nous avions obtenu pour la forme de raie correspondant à chaque classe de vitesses l'intégrale

$$\mathrm{I}(\mathbf{v}) = \mathrm{Re}\int_0^\infty d\tau\, \mathscr{V}(\mathbf{v},\tau)\exp\{(i\Delta-\gamma_{ca})\tau\},$$

où

$$\Delta = \omega_- + \omega_+ - \omega_{ca} + (k_- - k_+)\,v_z,$$

et où $\mathscr{V}(\mathbf{v},\tau)$ est la fonction d'autocorrélation

$$\mathscr{V}(\mathbf{v},\tau) = \iint_{-\infty}^{+\infty} dx\,dy\,\mathrm{U}_0^-(\mathbf{r})\,\mathrm{U}_0^+(\mathbf{r})\,\mathrm{U}_0^{-*}(\mathbf{r}-\mathbf{v}\tau)\,\mathrm{U}_0^{+*}(\mathbf{r}-\mathbf{v}\tau).$$

Pour obtenir des franges on doit faire précesser la cohérence optique ρ_{ca} entre deux zones de champ que nous noterons par les indices 1 et 2.

$$\mathrm{U}_0^\pm = \mathrm{U}_1^\pm\, e^{i\varphi_1^\pm} + \mathrm{U}_2^\pm\, e^{i\varphi_2^\pm}.$$

Nous prendrons pour fonctions $\mathrm{U}_i^\pm$ celles correspondant à des modes gaussiens séparés par la distance d :

$$\mathrm{U}_1^\pm = \mathrm{L}_1^\pm \exp\{-l_{\pm 1}[(x+d)^2+y^2]\},$$
$$\mathrm{U}_2^\pm = \mathrm{L}_2^\pm \exp\{-l_{\pm 2}(x^2+y^2)\},$$

où les fonctions $\mathrm{L}_i^\pm(z)$ sont des formes de Lorentz complexes [4] de largeur à mi-hauteur $b_{\pm i} = k_\pm\, w_{\pm i}^2$, et où $l_{\pm i} = \mathrm{L}_i^\pm / w_{\pm i}^2$.

La partie de $\mathscr{V}$ qui donne lieu à la formation des franges par transport de cohérence optique s'écrit (pour $v_x > 0$) :

$$\begin{aligned}\mathscr{V}_{12}(\mathbf{v}\tau) &= \iint_{-\infty}^{+\infty} dx\,dy\,U_2^-(\mathbf{r})\,U_2^+(\mathbf{r})\,U_1^{-*}(\mathbf{r}-\mathbf{v}\tau)\,U_1^{+*}(\mathbf{r}-\mathbf{v}\tau)\\ &\quad\times\exp\left[i(\varphi_2^- + \varphi_2^+ - \varphi_1^- - \varphi_1^+)\right]\\ &= \alpha\exp\{-\beta[v_y^2\tau^2 + (v_x\tau - d)^2]\exp\left[i(\varphi_2^- + \varphi_2^+ - \varphi_1^- - \varphi_1^+)\right],\end{aligned}$$

avec

$$\begin{aligned}\alpha &= \pi L_2^- L_2^+ L_1^{-*} L_1^{+*}(l_{-2}+l_{+2}+l_{-1}^*+l_{+1}^*)^{-1},\\ \beta &= (l_{+1}^*+l_{-1}^*)(l_{+2}+l_{-2})(l_{-2}+l_{+2}+l_{-1}^*+l_{+1}^*)^{-1}.\end{aligned}$$

Nous en tirons la contribution correspondante à la forme de raie

$$\begin{aligned}I_{12}(\mathbf{v}) &= \frac{\sqrt{\pi}}{2v_r}\operatorname{Re}\alpha\beta^{-1/2}\,e^{-\beta d^2}\,e^{i(\varphi_2^- + \varphi_2^+ - \varphi_1^- - \varphi_1^+)}\\ &\quad\times W\left\{\frac{[\Delta + i(\gamma_{ca} - 2\beta d v_x)]}{2v_r\beta^{1/2}}\right\},\end{aligned}$$

où W est la fonction de probabilité d'argument complexe ([6]) et où $v_r^2 = v_x^2 + v_y^2 = |\mathbf{v}_\perp|^2$.

Nous pouvons déduire plusieurs conclusions de cette formule : tout d'abord le profil ne sera symétrique que si d'une part $\varphi_2^- + \varphi_2^+ - \varphi_1^- - \varphi_1^+ = 0$ et si d'autre part α et β sont réels. La première condition est automatiquement satisfaite dans la géométrie proposée par Baklanov et coll. ([3]) où les quatre ondes constituent une seule onde stationnaire repliée (ceci implique $\omega^+ = \omega^-$). La position des franges reste cependant sensible à toute non-réciprocité entre les trajets aller et retour, et cette sensibilité pourrait être mise à profit dans certaines applications (comme par exemple l'étude de l'anisotropie de la vitesse de propagation de la lumière). La seconde condition est remplie lorsque les faisceaux sont adaptés deux à deux : $L_i^- = L_i^{+*}$. Nous remarquons enfin l'existence d'un seuil d'apparition des franges : $\gamma_{ca} \leqq 2\,d v_x \operatorname{Re}\beta$. Lorsque cette dernière condition est remplie nous pouvons extraire la partie oscillante du profil de raie au moyen de la formule ([6]) :

$$\begin{aligned}W\left\{\frac{[\Delta + i(\gamma_{ca} - 2\beta d v_x)]}{2v_r\beta^{1/2}}\right\} &= 2\exp\left[\frac{(\gamma_{ca} - 2\beta d v_x)^2}{4\beta v_r^2}\right]\\ &\quad\times\exp\left(\frac{-\Delta^2}{4\beta v_r^2}\right)\exp\left[\frac{i\Delta(2\beta d v_x - \gamma_{ca})}{2\beta v_r^2}\right]\\ &\quad - W^*\left\{\frac{\Delta + i(2\beta d v_x - \gamma_{ca})}{2v_r\beta^{1/2}}\right\},\end{aligned}$$

où le deuxième terme est une conséquence du recouvrement partiel des faisceaux et tend vers zéro lorsque leur éloignement relatif $d\,\beta^{1/2}$ augmente. Une autre conséquence de la relaxation est une augmentation de l'interfrange due à la modification des contributions relatives des différentes parties des faisceaux.

Pour étudier le problème en spectroscopie d'absorption saturée nous nous contenterons dans une première approche de considérer un système à deux niveaux d'énergies $E_a < E_b$ [convention opposée à celle utilisée dans ([4])]. Les diagrammes dont la contribution est différente de zéro après intégration sur v_z et sur τ'' (dans l'approximation de la largeur Doppler infinie) conduisent pour chaque composante d'effet de recul à la forme de raie [4] :

$$\mathrm{I}^{\pm}(\mathbf{v}_{\perp}) = \mathrm{Re}\int_0^{\infty} d\tau \int_0^{\infty} d\tau' \,\mathscr{S}^{\pm}(\mathbf{v}_{\perp}, \tau, \tau') \times \exp\{-2[i(\omega_{ba}-\omega)+\gamma_{ba}]\tau - \gamma_j \tau'\},$$

où ω_{ba} est corrigé par les déplacements dus à l'effet Doppler du deuxième ordre $-\omega_{ba}(v_r^2/2c^2)$ et à l'effet de recul [10] $+\delta$ ou $-\delta$ suivant que $j = a$ ou b et où

$$\mathscr{S}^{\pm}(\mathbf{v}_{\perp}, \tau, \tau') = \iint_{-\infty}^{+\infty} dx\, dy\, \mathrm{U}_0^{\pm}(\mathbf{r})\, \mathrm{U}_0^{\pm *}(\mathbf{r}-\mathbf{v}_{\perp}\tau) \times \mathrm{U}_0^{\mp}(\mathbf{r}-\mathbf{v}_{\perp}\tau'-\mathbf{v}_{\perp}\tau)\, \mathrm{U}_0^{\mp *}(\mathbf{r}-\mathbf{v}_{\perp}\tau'-2\,\mathbf{v}_{\perp}\tau).$$

En spectroscopie d'absorption saturée on a successivement sélection d'une classe de vitesse et interrogation de cette classe. A chacune de ces opérations correspond une cohérence optique $\rho_{ba}^{(1)}$ puis $\rho_{ba}^{(3)}$ qu'il faudra laisser tour à tour précesser librement entre deux zones de champ pour obtenir des franges. D'où la nécessité d'ajouter une troisième zone de champ à $\mathrm{U}_0^{\pm}$:

$$\mathrm{U}_3^{\pm} \exp i\varphi_3^{\pm} = \mathrm{L}_3^{\pm} \exp\{-l_{\pm 3}[(x-d')^2+y^2]+i\varphi_3^{\pm}\}.$$

On calcule tout d'abord la partie de $\mathscr{S}^{\pm}$ conduisant aux franges

$$\mathscr{S}_{123}^{\pm}(\mathbf{v}_{\perp}, \tau, \tau') = \iint dx\, dy\, \mathrm{U}_3^{\pm}(\mathbf{r})\, \mathrm{U}_2^{\pm *}(\mathbf{r}-\mathbf{v}_{\perp}\tau) \times \mathrm{U}_2^{\mp}(\mathbf{r}-\mathbf{v}_{\perp}\tau'-\mathbf{v}_{\perp}\tau)\, \mathrm{U}_1^{\mp *}(\mathbf{r}-\mathbf{v}_{\perp}\tau'-2\,\mathbf{v}_{\perp}\tau) \times \exp[i(\varphi_3^{\pm}-\varphi_2^{\pm}+\varphi_2^{\mp}-\varphi_1^{\mp})].$$

La phase totale pouvant prendre n'importe quelle valeur, les franges seront en général déplacées. Cependant pour une onde stationnaire repliée [2] on a

$$\varphi_3^{+}-\varphi_2^{+}+\varphi_2^{-}-\varphi_1^{-} = -(\varphi_3^{-}-\varphi_2^{-}+\varphi_2^{+}-\varphi_1^{+}),$$

de sorte que les contributions non symétriques en fréquence pour les ondes aller et retour peuvent s'annuler. Ceci exige toutefois que les contributions des deux ondes soient les mêmes. Cette situation idéale de deux ondes d'égale intensité était déjà requise pour annuler le déplacement des raies induit par la courbure d'un faisceau unique [[4], [7]] et nous retrouvons ici un phénomène analogue. On peut encore une fois extraire la partie purement oscillante de la forme de raie

$$\begin{aligned}\mathrm{I}_{123,\,\mathrm{osc}}^{\pm} = {} & \frac{\pi w^2}{4}\,\frac{\pi}{2}\,\frac{w^2}{v_r^2}\,\mathrm{Re}\exp[i(\varphi_3^{\pm}-\varphi_2^{\pm}+\varphi_2^{\mp}-\varphi_1^{\mp})] \\ & \times \exp\left[\frac{(d'-d)^2}{4w^2}-\frac{(d^2+d'^2)}{w^2}+\frac{w^2}{2v_r^2}\left(\frac{v_x}{w^2}(d+d')-\gamma_{ba}\right)^2\right] \\ & \times \exp\left[-\frac{w^2}{2v_r^2}(\omega-\omega_{ba})^2\right]\mathrm{W}\left[(\omega_{ba}-\omega+i(\gamma_j-\gamma_{ba}))\frac{w}{\sqrt{2}\,v_r}\right] \\ & \times \exp\left\{i\frac{w^2}{v_r^2}\left[\frac{v_x}{w^2}(d+d')-\gamma_{ba}\right](\omega-\omega_{ba})\right\},\end{aligned}$$

où nous avons pris pour simplifier $\mathrm{L}_i^{\pm} \equiv 1$ et $w_{\pm i} \equiv w$.

Ce signal est maximal pour $d = d'$ et décroît très vite lorsque $d \neq d'$. Ceci est facile à comprendre si on se souvient que l'intégration sur v_z conduit à une égalité entre τ et τ''. La relaxation du dipole conduit ici encore à une modification de l'interfrange et à un seuil pour l'apparition de l'oscillation. Nous n'avons pas considéré l'intégration sur les composantes de la vitesse transverse $\mathbf{v}_\perp$ dont la distribution dépend de la géométrie exacte de l'expérience (jet ou cuve) et du procédé de détection.

Notons que de très belles franges de Ramsey à trois zones ont récemment pu être observées en spectroscopie d'absorption saturée du méthane à 3,39 µm et du néon dans le visible ([8]).

Notre approche théorique pourra aussi être exploitée selon les mêmes lignes pour l'étude du profil de raie pour des géométries plus compliquées du champ (on pourra par exemple étudier le déplacement induit par un défaut de parallélisme entre les trois faisceaux) et aussi dans le cas d'une dépendance temporelle du champ. Il apparaît également possible de calculer l'influence de la géométrie sur le déplacement lumineux au cinquième ordre de perturbation.

Enfin le calcul des franges en champ fort a pu être entrepris grâce à la résolution numérique des équations de la matrice densité et sera présenté ultérieurement ([9]).

(*) Séance du 29 novembre 1976.

([1]) N. F. Ramsey, *Phys. Rev.*, 78, 1950, p. 695-699; *Molecular Beams*, Oxford University Press, 1955.
([2]) Ye. V. Baklanov, B. Ya. Dubetsky et V. P. Chebotayev, *Applied Physics*, 9, 1976, p. 171-173.
([3]) Ye. V. Baklanov. V. P. Chebotayev et B. Ya. Dubetsky, *Applied Physics* (à paraître).
([4]) C. J. Bordé, J. L. Hall. C. V. Kunasz et D. G. Hummer, *Phys. Rev.*, 14, 1976, p. 236-263.
([5]) C. J. Bordé, *Comptes rendus*, 282, série B, 1976, p. 341.
([6]) M. Abramowitz et I. A. Stegun, *Handbook of Mathematical Functions*, Dover, New York, 1965.
([7]) J. L. Hall et C. J. Bordé, *Appl. Phys. Letters*, 29, 1976, p. 788-790.
([8]) J. Bergquist, S. A. Lee et J. L. Hall, (à paraître).
([9]) C. J. Bordé, J. L. Hall et C. V. Kunasz, (à paraître).
([10]) C. J. Bordé, *Comptes rendus*, 283, série B, 1976, p. 181. Nous saisissons cette occasion pour corriger une erreur typographique qui s'est glissée dans la référence ([10]) : il manque un facteur deux au dénominateur de l'expression donnant δ.

Laboratoire de Physique des Lasers,
Université Paris-Nord,
avenue J.-B. Clément,
93430 *Villetaneuse.*