Rapport BIPM-72/8

LASERS ASSERVIS SUR UNE RAIE D'ABSORPTION SATUREE (Séminaire du 10-5-72 - P. Giacomo)

Le phénomène de saturation fait apparaître des raies spectrales d'absorption très fines, exemptes de l'élargissement habituel dû à l'effet Doppler d'agitation thermique des molécules ou atomes. Ces raies d'absorption permettent des asservissements extrêmement précis de lasers. Pour mettre en évidence et comprendre l'origine du phénomène d'absorption saturée, nous nous servirons d'une expérience simple, relativement facile à interpréter.

1. Mise en évidence de la saturation de l'absorption (fig. 1)

Dans une cuve à absorption contenant un gaz, CH₄ par exemple, on envoie simultanément deux faisceaux lumineux de même fréquence γ , issus d'un même laser. Les deux faisceaux se superposent dans la cuve, mais ils y cheminent en sens inverse, suivant l'axe commun Ox. L'un, que nous appellerons faisceau pompe, est très intense; l'autre, que nous appellerons faisceau sonde, sert à mettre en évidence la saturation de l'absorption ; il est beaucoup moins intense que le faisceau pompe. Un isolateur (polariseur circulaire par exemple) évite le retour de lumière vers le laser source.

a) Effet Doppler.- Les molécules du gaz possèdent deux niveaux d'énergie E_1 et E_2 séparés par $E_2 - E_1 = h \psi_0$ (fig. 2). Elles peuvent absorber le rayonnement de fréquence ψ_0 en passant du niveau E_1 au niveau E_2 . Elles retournent très rapidement vers le niveau E_1 par de multiples processus qui n'ont pas d'importance pour la suite.

Dans le gaz, les molécules sont animées de mouvements désordonnés (agitation thermique). En raison de l'effet Doppler, lorsqu'une molécule est animée d'une vitesse v de composante radiale u par rapport à la source du rayonnement de fréquence v, elle "voit" un rayonnement de fréquence

$$\mathcal{V}(1 - \frac{u}{c})$$

(u est mesurée algébriquement dans le sens source ---> molécule).



figure 1



figure 2



figure 3

Pour une valeur quelconque de $\hat{\mathbf{v}}$ (voisine de $\hat{\mathbf{v}}_0$), les molécules qui absorbent le faisceau pompe sont donc celles qui ont une composante de vitesse suivant Ox ;

$$u_{y} = c \frac{y - y_{0}}{y}$$

telle que $\dot{y}_{0} = y \left(1 - \frac{u_{y}}{c}\right)$;

pour absorber le faisceau sonde, qui se propage en sens inverse, les molécules doivent avoir une composante de vitesse <u>mesurée algébriquement sur l'axe Ox</u> u', = - u, (fig. 3). Si $\gamma \neq \gamma_0$, l'absorption des deux faisceaux est due à des molécules différentes. Leurs absorptions sont indépendantes, respectivement proportionnelles aux concentrations N_P ou N_S des molécules qui se trouvent au niveau E₁ et qui sont animées de la vitesse axiale convenable, u, ou -u, (fig. 4). Notons que, le gaz étant en moyenne immobile, on devrait avoir N_P = N_S; ce n'est plus vrai si le faisceau pompe est très intense et fait apparaître le phénomène de saturation.

b) Effet de saturation. - Lorsque le faisceau pompe est suffisamment intense, le "débit" des transitions $E_1 \rightarrow E_2$ qu'il provoque peut devenir notable par rapport au débit des processus inverses $E_2 \rightarrow E_1$. La concentration des molécules de vitesse axiale u, au niveau E_1 décroît et devient $N'_P < N_S$ (simultanément, la concentration de ces molécules au niveau E_2 devient $n'_P > n_S$) (fig. 4 b). L'absorption du faisceau pompe tend donc à se saturer : elle est légèrement inférieure à ce que l'on pourrait prévoir si l'on négligeait cet apauvrissement de la concentration N_P. Ceci est valable quelle que soit la fréquence ϑ , dès que l'absorption devient importante. La courbe donnant les variations de l'absorption du faisceau pompe en fonction de la fréquence ϑ (variations dues aux variations de N_P en fonction de u,) ne présente aucune particularité remarguable (fig. 5 a).

c) <u>Mise en évidence de la saturation à l'aide du faisceau sonde</u>.-Le faisceau sonde est peu intense. Il ne provoque aucun affaiblissement appréciable de N_S. Mais, lorsque $\gamma = \gamma_0$, le faisceau sonde et le faisceau pompe sont absorbés par les mêmes molécules de vitesse axiale

$$u_{\gamma_0} = u_{\gamma_0}^{\dagger} = 0.$$

Si leur concentration en l'absence du faisceau pompe est N_O, elle devient en sa présence N_O $< N_O$ et l'absorption du faisceau sonde diminue (fig. 4 c).

Lorsqu'on fait varier simultanément la fréquence γ des deux faisceaux, l'absorption du faisceau sonde présente donc un minimum très étroit pour $\gamma = \gamma_0$ (fig. 5 b).

Pour mettre en évidence ce phénomène de façon plus frappante, on peut moduler l'intensité du faisceau pompe, à basse fréquence, à l'aide d'une roue dentée par exemple (fig. 1).





Lorsqu'on passe par $\gamma = \gamma_0$, la concentration des molécules susceptibles d'absorber le faisceau sonde passe alternativement de N₀ à N'₀; l'absorption du faisceau sonde est donc aussi modulée, alors qu'elle ne l'est pas si $\gamma \neq \gamma_0$. En filtrant (par détection synchrone) la composante modulée du signal fourni par le photorécepteur, on isole le pic dû à l'absorption saturée (fig. 5 c).

L'effet Doppler donne des largeurs relatives des profils spectraux d'émission ou d'absorption de l'ordre de l x 10^{-6} , c'est-à-dire 0,3 m⁻¹ en nombre d'ondes (ou 100 MHz en fréquence) pour $\lambda = 3 \ \mu\text{m}$ (ou $\gamma = 10^{14} \ \text{Hz}$). La largeur du pic d'absorption saturée est plus faible de plusieurs ordre de grandeur : elle est de l'ordre de 100 kHz dans le cas du méthane ($\lambda_0 = 3,39 \ \mu\text{m}$), de l'ordre de 1 MHz dans le cas de l'iode ($\lambda_0 = 0,633 \ \mu\text{m}$).

On peut dire que l'absorption saturée élimine l'effet Doppler, puisque seules les molécules sans vitesse radiale interviennent. Il subsiste cependant deux causes principales d'élargissement du profil spectal, responsables de la largeur résiduelle. D'une part la largeur dite naturelle, due à la durée de vie finie des niveaux, d'autre part la durée finie d'interaction entre le rayonnement et les molécules.

Ce dernier effet peut s'interpréter simplement. Les molécules correspondant à u, = 0 ont des vitesses v purement transversales ; leur séjour ^vO dans le faisceau a une durée limitée. Elles voient donc une onde sinusoïdale non pas infinie mais limitée par un créneau de durée plus ou moins courte suivant que leur vitesse est plus ou moins grande. Une telle onde a un spectre de fréquences d'une certaine largeur δv . Si bien que, même si l'onde incidente est purement sinusoïdale de fréquence γ , les molécules sans vitesse axiale peuvent encore l'absorber dans un petit domaine δv centré sur γ_0 .

d) <u>Conséquences.</u>- Les possibilités ouvertes par cette méthode sont brillamment illustrées par une application récente. La structure fine des niveaux de l'hydrogène avait été prévue théoriquement et mise en évidence depuis une trentaine d'années dans le domaine des radiofréquences. Il était impossible de la déceler dans les radiations visibles, la séparation des raies d'émission ou d'absorption correspondantes étant beaucoup plus faible que la largeur Doppler. Cette structure fine a pu être récemment mise en évidence dans des raies du spectre visible de l'hydrogène par la méthode décrite ci-dessus.

Pour l'usage métrologique, les raies d'absorption saturée présentent a priori un intérêt considérable. Leur très faible largeur constitue un avantage évident, du point de vue de la précision. Mais c'est surtout l'exactitude que nous devons considérer. Comme il s'agit de raies d'absorption, elles peuvent apparaître dans un gaz non excité (CH₄ à $\lambda = 3,39$ µm, I₂ à $\lambda = 0,633$ µm, et d'autres). On fait ainsi disparaître deux causes possibles de décalage de la fréquence γ_0 : l'effet Doppler (qui existe par exemple dans les lampes à krypton excitées en courant continu) et l'effet Stark (effet du champ électrique). Il reste cependant deux effets principaux à étudier : l'effet des molécules voisines (effet de pression) et celui des champs magnétiques (effet Zeeman). Il se trouve que, dans le cas du méthane à $\lambda = 3,39$ µm, ces effets sont extrêmement faibles.

2. Cuve d'absorption dans une cavité laser

Pour notre usage, il nous suffit de savoir qu'un laser comprend un "amplificateur" et une cavité résonante. Dans le cas du laser à hélium-néon qui nous intéresse ($\lambda_0 = 3,39 \ \mu m$ ou $\lambda_0 = 0,633 \ \mu\text{m}$), l'amplificateur est un tube à gaz, contenant un mélange d'hélium et de néon à des pressions partielles convenables, excité par une décharge haute fréquence (sans électrodes) ou en continu (avec électrodes). Ce tube à gaz a pour propriété essentielle d'amplifier les ondes qui le traversent, pourvu que leur longueur d'onde soit voisine de λ_0 , dans un domaine de l'ordre de l x 10⁻⁶ correspondant sensiblement à la largeur Doppler de la raie d'émission. Cet amplificateur est placé entre deux miroirs de facteurs de réflexion très voisins de l, constituant la cavité résonante (fig. 6a). Une onde qui prend naissance dans la cavité subit des réflexions multiples entre les miroirs et est amplifiée à chaque trajet. Lorsque les ondes successives se retrouvent en phase à chaque trajet de même sens, leurs amplitudes s'ajoutent et les effets d'amplification successifs sont cumulatifs ; si l'amplification est supérieure aux pertes, on a un oscillateur. La fréquence de l'oscillateur peut être ajustée en réglant la longueur de la cavité. La longueur d'onde émise correspond aux interférences constructives ; on retrouve la même fréquence et la même intensité chaque fois que la longueur x de la cavité augmente de $\lambda/2$ (fig. 6 b).

Pour utiliser l'absorption saturée, on place en outre dans la cavité une cuve à absorption contenant du méthane sous une pression de quelques dixièmes de pascal (fig. 7 a). Deux faisceaux d'intensités à très peu près égales se propagent en sens inverse dans la cuve. Chacun de ces faisceaux joue le rôle de pompe vis à vis de l'autre. L'absorption passe donc pour chacun par un minimum très aigü lorsque la fréquence γ' des ondes passe par $\gamma = \gamma_0$. Lorsque la cavité a une longueur quelconque, l'émission I est plus faible qu'en l'absence de méthane, puisque l'absorption contrecarre l'amplification. Mais lorsqu'on passe par une longueur de la cavité telle que la fréquence d'oscillation coïncide avec γ_0 , l'émission passe par un maximum très aigü (fig. 7 b).

3. Asservissement du laser

Supposons d'abord, pour simplifier l'exposé, que $\dot{\gamma} = \dot{\gamma}_0$ coïncide avec le maximum d'émission du laser en l'absence de CH4 (fig. 8). On module la longueur x de la cavité en déplaçant longitudinalement l'un des miroirs, au voisinage de sa position moyenne, suivant une fonction sinusoïdale du temps





figure 7



figure 8

de fréquence N et d'amplitude $\triangle x$ petite. La longueur x de la cavité devient

 $x = x_0 + \Delta x \cos \omega t$ avec $\omega = 2 \text{ II N}$.

L'intensité émise I(x) devient elle-même fonction périodique du temps

$$I(x_0 + \Delta x \cos \omega t) = I(x_0) + \frac{dI}{dx}(x_0) \Delta x \cos \omega t + \xi \Delta x$$

Le terme principal de la modulation de I est à la fréquence N et d'amplitude proportionnelle à la dérivée $\frac{dI}{dx}(x_0)$. Il s'annule et change de signe (changement de phase de TC) lorsque x_0 passe par la valeur x_M qui rend I(x) maximale.

A l'aide d'un récepteur photoélectrique et d'une détection synchrone, on peut asservir la longueur moyenne x_0 de la cavité à coïncider avec x_M . Schématiquement (fig. 9) on commande, en même temps que le mouvement du miroir, une "porte" électronique qui s'ouvre pour $\cos \omega t > 0$ (en trait fort sur la figure). On filtre, dans le signal du photorécepteur, la composante alternative S(t) et on l'astreint à passer par la porte. La partie P(t) de S (t) transmise (en trait fort sur la figure) est proportionnelle à $\frac{dI}{dx}$. Elle est positive si $x_0 = x_1$, négative si

 $x_0 = x_2$, et nulle si $x_0 = x_M$. Un filtre passe-bas fournit la valeur moyenne P (t) de P(t) prise sur un grand nombre de périodes. On dispose ainsi d'un signal continu, à l'aide duquel on commande, par l'intermédiaire de céramiques piézoélectriques, la longueur de la cavité : on l'allonge si P (t) > 0 et on la raccourcit si P (t) < 0. L'asservissement maintient donc la longueur x_0 à la valeur x_M et la fréquence γ du laser à la valeur γ_0 .

4. Problèmes posés par l'asservissement

a) <u>Parasites aléatoires</u>.- Le signal de commande P (t) peut être perturbé par de nombreuses causes de <u>bruit</u> : fluctuations dans la chaîne électronique ou fluctuations de I elles-mêmes dues aux fluctuations de la longueur de la cavité (vibrations mécaniques des supports, variations acoustiques de l'indice de l'air) ou aux fluctuations du courant d'excitation du tube amplificateur. On peut atténuer ces bruits en augmentant la constante de temps du filtre qui fournit P (t) à partir de P (t). On augmente du même coup le temps de réponse de l'asservissement. Si l'on veut une bonne stabilité à très court terme, cette solution n'est pas acceptable ; on doit éliminer à la source ces bruits aléatoires et choisir une fréquence de modulation N aussi élevée que possible.

b) <u>Parasites à la fréquence N.-</u> Ce sont les plus dangereux : ils s'ajoutent en amplitude à S (t) et entraînent un décalage par rapport à x_M . Ils demandent une étude très soignée de la boucle d'asservissement. En général, on les met en évidence en annulant



 \mathbf{r}^{i}

figure 9



l'amplitude Ax: si P (t) ne s'annule pas, il faut rechercher l'origine des parasites résiduels et les supprimer.

c) Pente du fond.- Le pic d'absorption saturée ne coïncide généralement pas avec le maximum d'émission du laser en l'absence de CH₄ (fig. 7 b). On peut dire qu'à ce pic s'ajoute un "fond" dont la pente n'est pas nulle. L'abscisse x_M du maximum de I (x) se trouve alors décalée par rapport à celle du maximum du pic d'absorption saturée (fig. 10 a). La fréquence $\dot{\gamma}_M$ du laser asservi se trouve donc aussi décalée par rapport à $\dot{\gamma}_0$ et le décalage est beaucoup moins reproductible que $\dot{\gamma}_0$: il dépend essentiellement de la pente du fond, donc des caractéristiques du tube amplificateur. Pour annuler le décalage $\ddot{\gamma}_M - \ddot{\gamma}_0$, dans le cas du méthane, Hall et Barger ajustent les pressions d'hélium et de néon à des valeurs telles que le maximum du fond coïncide avec $\dot{\gamma}_0$. Le fait même que l'on puisse agir ainsi sur le fond, donc indirectement sur $\ddot{\gamma}_M - \dot{\gamma}_0$, montre que des écarts systématiques peuvent apparaître entre deux lasers asservis différents ou, pour un même laser, en fonction du temps (diffusion de l'hélium). Alors que la stabilité à court terme (de l à 100 s) peut atteindre l x 10⁻¹³, la reproductibilité dépasse difficilement l x 10⁻¹⁰ ou l x 10⁻¹¹.

Les pics d'absorption saturée et l'effet du fond sont plus facilement visibles sur le signal P (t) de commande de l'asservissement : on bénéficie du filtrage par la détection synchrone et par le filtre passe-bas. Comme P (t) est proportionnel à la dérivée $\frac{dI}{dx}(x_0)$, on obtient en fonction de la longueur x_0 de la cavité donc de la fréquence \mathcal{Y} du laser des courbes caractéristiques (fig. ll). La pente du fond entraîne un décalage vertical de



figure 11



figure 12



figure 13

la courbe $\frac{dI}{dx}(x_0)$ donc un décalage du point d'intersection x_M avec l'axe $\frac{dI}{dx} = 0$. On peut même, si la pente du fond (fig.lOb et ll) est trop grande, n'avoir plus de maximum de I (x) au voisinage de y_0 . C'est le cas, par exemple, pour l'absorption saturée de l'iode dans le laser en cours d'étude au B.I.P.M. On a plusieurs pics peu intenses correspondant à plusieurs raies d'absorption très voisines (structure hyperfine). Ces pics ne sont pas visibles sur la courbe I (x_0) à cause du bruit, mais on peut les mettre en évidence (non sans peine) sur P (t) $\alpha \frac{dI}{dx}(x_0)$. Le fond étant à peu près parabolique pour I (x_0), la forme générale de $\frac{dI}{dx}(x_0)$ suit à peu près une droite oblique (fig. 12) sur laquelle apparaissent plusieurs crochets caractéristiques analogues à ceux de la figure 11. Il faudrait pouvoir maitriser le fond avec beaucoup de sécurité pour pouvoir amener y_M à coïncider avec l'une des fréquences y_0 sans décalage. La méthode suivante (vue en fonctionnement au N.P.L.) permet d'améliorer la situation.

d) Utilisation du 3^e harmonique

I (x) peut être considéré comme la somme de deux fonctions, l'une très large F (x) représentant le fond, l'autre étroite f (x) représentant la raie d'absorption saturée. On cherche à diminuer l'effet parasite de F (x) qui déplace le maximum de I (x) par rapport à celui de f (x). Une solution consiste à utiliser pour l'asservissement le terme de fréquence 3 N dans I ($x_0 + \Delta x \cos \omega t$).

Nous admettrons que F (x) et f (x) sont des fonctions de même forme ; ce n'est certainement pas exact, mais cela nous donnera une idée du gain à attendre.

Posons F $(x) = A \cdot f (Bx - C)$.

F (x) étant beaucoup plus large et intense que f (x), A est \gg l et B \ll l (B donne le rapport des largeurs de f et F)

I (x) = f (x) + F (x) = f (x) + Af (Bx - C) $\frac{dI}{dx} = \frac{df}{dx} + AB \frac{df}{dx} (Bx - C)$ $\frac{d^{3}I}{dx^{3}} = \frac{d^{3}f}{dx^{3}} + AB^{3} \frac{d^{3}f}{dx^{3}} (Bx - C)$

on voit déjà que le terme dû au fond dans $\frac{d^3I}{dx^3}$ est atténué par le facteur B²(de l'ordre de 10⁻⁶). Or, si $\frac{dx^3}{dx^3}$ f (x) est symétrique, le maximum de f (x) correspond aussi bien à un zéro de $\frac{d^3f}{dx^3}$ qu'à un zéro de $\frac{df}{dx}$ (fig. 13).

Le terme "parasite" $AB^3 \frac{d^3f}{dx^3} (Bx - x_0)$ a de bonnes chances d'être beauxoup moins nocif que le terme $AB \frac{df}{dx} (Bx - x_0)$, et d'entraîner, finalement, un décalage de fréquence négligeable.

Comment utiliser cette dérivée troisième ?

Au 3°), nous avons limité le développement de I $(x_0 + Ax \cos \omega t)$ au 2^e terme ; poussons ce développement plus loin :

$$I (x_0 + \Delta x \cos \omega t) = I (x_0) + \frac{dI}{dx} (x_0) \Delta x \cos \omega t + \frac{d^2 I}{dx^2} \frac{\Delta x^2 \cos^2 \omega t}{2} + \frac{d^3 I}{dx^3} \frac{\Delta x^3 \cos^3 \omega t}{6} + \xi \Delta x^3$$

En exprimant les puissances successives de $\cos \omega t$ en fonction de $\cos 2\omega t$, $\cos 3\omega t$, ..., le premier terme en $\cos 3\omega t$ qui apparaît est :

$$\frac{d^3I}{dx^3} \frac{\Delta x^3}{6} \frac{\cos 3\omega t}{4}$$

il est proportionnel à $\frac{d^3I}{dx^3}$. On obtiendra le signal de commande $\overline{P_3}$ (t) en effectuant un filtrage et une détection synchrone de la composante de fréquence 3N de S (t). $\overline{P_3}$ (t) s'annule et change de signe pour $x_0 = x_M$ (pourvu que le terme dû au fond soit négligeable) et permet l'asservissement.

Cette méthode est séduisante, mais demande quelques précautions supplémentaires : il faut que la détection synchrone à la fréquence 3N soit liée en phase avec $\triangle x \cos \omega t$, il faut aussi s'assurer de l'absence de "parasites" de fréquence 3N ; or il est relativement plus facile d'en avoir : si par exemple le système de déplacement du miroir présente une distorsion d'amplitude, on aura, au lieu de $x = x_0 + \Delta x \cos \omega t$,

 $\mathbf{x} = \mathbf{x}_0 + \Delta \mathbf{x} \cos \omega \mathbf{t} + \alpha \cos 2 \omega \mathbf{t} + \beta \cos 3 \omega \mathbf{t} + \dots$

d'où plusieurs terme parasite de fréquence 3N. De même si, dans la détection synchrone, le signal de commande de la porte n'est pas purement sinusoïdal, il peut contenir des termes de fréquence N ou 2N ; ces termes font encore apparaître dans P (t) des termes parasites systématiques. Quoi qu'il en soit, on obtient effectivement par ce procédé un gain considérable de rapport signal utile/fond, pour l'iode à $\lambda = 0,633$ µm. Il reste encore quelques problèmes à étudier : comment éviter que l'asservissement saute accidentellement, d'un pic à l'autre sous l'effet d'un signal parasite ? Quels sont les effets de déplacement (pression, Zeeman) ? Quelle composante choisir ?