

THESE

présentée à

L'UNIVERSITÉ DES SCIENCES
ET TECHNIQUES DE LILLE

pour obtenir le titre de

DOCTEUR DE SPÉCIALITÉ

par

Jean-Marie CARPENTIER

*

SPECTROMÈTRE MILLIMÉTRIQUE DE POLARISATION POUR L'ÉTUDE

DES GAZ PARAMAGNÉTIQUES À BASSE PRESSION



Soutenue le 6 novembre 1979 devant la Commission d'Examen

Membres du Jury :

Président : M. CONSTANT

Rapporteur : M. MACKE

Examineurs : MM. WERTHEIMER

TILLIEU

JOURNEL

Ce travail a été effectué à l'U.E.R. de Physique de l'Université des Sciences et Techniques de Lille, dans le Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne, équipe associée au C.N.R.S., dirigé par Monsieur le Professeur WERTHEIMER au sein de l'équipe animée par Monsieur MACKE.

Je remercie particulièrement Monsieur MACKE qui est à l'origine de ce travail et qui en a supervisé l'ensemble.

Monsieur SEGARD pour son aide tout au long de ce travail et pour sa critique du manuscrit.

Monsieur ROSSEELS pour sa contribution en ce qui concerne l'ensemble de l'électronique utilisée.

Mes remerciements vont également à M. le Professeur CONSTANT pour l'honneur qu'il m'a fait en acceptant de présider le Jury.

Je remercie également Monsieur TILLIEU et Monsieur JOURNEL d'avoir accepté de faire partie de ce Jury.

Je me dois également de remercier l'ensemble du personnel technique et plus particulièrement celui de l'atelier de mécanique de l'U.E.R. qui a largement contribué à la réalisation du matériel.

Je ne saurais oublier ceux qui ont contribué à la confection du présent mémoire et, en particulier, Madame FOULON qui s'est chargée de la tâche, Oh combien ingrate, de la frappe du texte. Je leur adresse mes remerciements.

Enfin, je remercie l'ensemble des membres du Laboratoire pour leurs critiques et conseils au cours de la réalisation de ce travail.

Thèse CARPENTIER

I Errata

- p5 Figure 1 ajouter "Analyseur croisé"
- p19 Dans l'expression de \mathcal{E}_a (lignes 7 et 8) il y a lieu de remplacer $U_y(1,0)$ et $U_y(-1,0)$ par $|U_y(1,0)|^2$ et $|U_y(-1,0)|^2$
- p43 En milieu de page lire "vis micrométrique" au lieu de "vis micromimétrique"
- p52 milieu de page lire "figure de bruit" au lieu de "figure ou bruit"
- p58 lire III.1-2-b au lieu de II.1-2-b
- p62 lire III.5 au lieu de II.5
- p64 milieu de page. lire "Sub-Doppler" au lieu de "SubDoppler"
- p65 ligne 2. lire "la distance $2\gamma B$ " au lieu de "la distance $2\gamma\beta$ "
- p71 milieu de page
lire "versatilité" au lieu de "versalité"

Bibliographie (9) G.H.TOWNES, A.L. SCHAWLOW

(11) C. WIEMAN

II Addenda

p.17

Dans le cas général $\langle J' || \lambda || J \rangle$, introduit dans l'équation (23), est une écriture symbolique d'un élément de matrice réduit qui prend en fait des formes très différentes selon la nature de la transition et du couplage (dipolaire électrique ou magnétique).

p20

Nous avons traité le cas de l'oxygène en raison de l'intérêt de cette molécule sur le plan expérimental. Ce cas diffère de celui traité théoriquement en raison de la nature du couplage (dipolaire magnétique) et des transitions qui ne sont pas rotationnelles au sens propre du terme). Ceci introduit des modifications dans l'élément de matrice réduit $\langle J' || \lambda || J \rangle$ mais non dans la dépendance en M (liée au symbole $3j$ de WIGNER). L'élément de matrice réduit étant inclus dans le coefficient d'absorption β de la transition considérée, les équations finales (27) et (30) s'appliquent donc au cas de l'oxygène, ce qui est confirmé par les mesures présentées pages 60 à 63.

p.23, 60, 61, 68

Les transitions de l'oxygène considérées ici ne sont pas des transitions rotationnelles au sens strict mais des transitions de structure fine à l'intérieur de la structure rotationnelle.

SOMMAIRE

INTRODUCTION	1
CHAPITRE I : PRINCIPE DE SPECTROSCOPIE DE POLARISATION	
PAR EFFET FARADAY RESONNANT	4
I.1. Principe élémentaire	5
I.2. Calcul général	11
I.3. Résolution des signaux	26
I.4. Augmentation de la sensibilité par utilisation d'une structure résonnante	27
1.4.1. Cavité résonnante isotrope.	28
1.4.2. Cavité résonnante anisotrope.	32
CHAPITRE II : REALISATION EXPERIMENTALE	
II.1. Etude préliminaire.	37
II.2. Réalisation mécanique	42
II.2.1. Support du spectromètre	42
II.2.2. Support de la partie émettrice.	43
II.2.3. Support de la partie réceptrice	43
II.2.4. Support de grille	47
II.2.5. Cellule d'interaction	47
II.2.6. Miroirs isotropes et anisotropes.	48
II.2.7. Montage du spectromètre	50
II.3. Dispositifs annexes du spectromètres.	50
II.3.1. Production des radicaux	50
II.3.2. Génération du champ magnétique.	50
II.3.3. Détection superhétérodyne	52
II.3.4. Stabilisation source et oscillateur local .	53

CHAPITRE III. PERFORMANCES DU SPECTROMETRE ET APPLICATIONS.	55
III.1. Caractéristiques hyperfréquences	56
III.1.1. Pertes d'insertion du spectromètre.	56
III.1.2. Facteur d'extinction $-e-$	56
III.2. Caractéristiques du balayage du champ magnétique	59
III.3. Forme des signaux obtenus.	61
III.4. Sensibilité du spectromètre.	61
III.5. Mesure de l'épaisseur optique d'un milieu Intensité de transition.	62
III.6. Spectroscopie sans effet Doppler. Croisement de niveaux.	64
III.7. Spectroscopie en temps résolu.	66
CONCLUSION.	71

INTRODUCTION

L'utilisation d'une lumière convenablement polarisée pour produire ou détecter au sein d'une vapeur des atomes dans un sous-niveau Zeeman déterminé est à l'origine du développement d'un nombre considérable de méthodes spectroscopiques utilisant des sources de lumière conventionnelles.

A la suite de la découverte de l'effet Hanle (1923), de l'idée du pompage optique par *KASTLER* (1950) et de la première expérience de double résonance radio-optique par *BROSSEL* et *BITTER* (1952), des méthodes de plus en plus raffinées ont apporté de nombreuses données spectroscopiques sur les états fondamentaux, métastables et excités des atomes (Facteur de Landé, durée de vie radiative, déplacement radiatifs, structure hyperfine, etc ...).

Dans ces expériences, l'interaction avec l'onde lumineuse est linéaire en raison de la faible densité spectrale du rayonnement (excitation "broad line") et la résolution atteinte est bien meilleure que celle d'un spectromètre optique conventionnel puisqu'elle n'est limitée que par la largeur naturelle des niveaux d'énergie. Notons cependant que, bien que la détection se fasse optiquement, les spectres accessibles par ces méthodes sont limités au domaine radiofréquence.

Cette situation s'est trouvée radicalement modifiée par l'avènement des lasers qui ont permis notamment d'étendre au domaine optique les résolutions atteintes en radiofréquence. Nous nous limitons ici à la méthode de spectroscopie Laser de *WIEMAN* et *HANSCH* (1976) qui exploite des idées analogues aux précédentes et qui est à l'origine de notre travail. Dans cette méthode, un fort champ laser polarisé circulairement induit une anisotropie dans un gaz présentant une transition résonante. Cette anisotropie est détectée à l'aide d'un second faisceau se propageant en sens inverse, polarisé rectilignement, issu du même laser. La détection s'effectue derrière un analyseur croise.

Comme en absorption saturée, la résonance observée sur l'intensité de la lumière transmise a une largeur fixée par les collisions et l'émission spontanée et non par l'effet Doppler. Grâce à l'utilisation des effets de polarisation, cette résonance est observée sur un fond noir et non pas superposée à un "fond Doppler" important. Compte tenu du bruit d'amplitude des lasers, la méthode apporte un gain considérable en sensibilité.

En spectroscopie moléculaire microonde, où les sources cohérentes existent depuis longtemps, la quasi totalité des spectromètres utilisés fonctionnent en transmission. Les absorptions résonantes des gaz se traduisent alors par une variation très faible du signal transmis, compte tenu des valeurs usuelles des coefficients d'absorption (10^{-5} à 10^{-12} cm^{-1}).

Les performances des détections superhétérodyne dans ce domaine incitent à étudier des méthodes où le signal associé à la résonance est observé sur un fond aussi noir que possible. Dans cet esprit, des spectromètres superhétérodyne à bras de compensation ont déjà été réalisés. Au lieu d'une extinction par interférence destructive, nous avons voulu examiner les possibilités d'extinction par polarisation en nous inspirant des méthodes de spectroscopie laser de polarisation. Dans ce travail exploratoire, nous nous sommes limités à une anisotropie circulaire induite par un faible champ magnétique axial. L'emploi du spectromètre décrit sera donc restreint aux molécules paramagnétiques (radicaux libres) qui connaissent présentement un regain d'intérêt, notamment dans le domaine millimétrique.

Notre travail expérimental s'est fait en deux étapes. Un premier prototype de spectromètre a été réalisé pour juger des possibilités de la méthode et des difficultés à vaincre. Les premiers résultats étant encourageants, une version mécanique définitive et facilement adaptable à diverses utilisations a été construite. Elle nous a permis d'effectuer la plupart des expériences permettant de tester les possibilités de la spectroscopie millimétrique de polarisation.

Bien entendu, la présentation de notre travail ne suit pas exactement cet ordre chronologique, mais sera faite de façon plus académique.

Un premier chapitre est consacré à l'exposé des principes, qui en fait se sont dégagés au fur et à mesure de l'étude expérimentale. La réalisation pratique est présentée dans un second chapitre et le dernier chapitre est consacré à la description de quelques expériences caractérisant les possibilités de l'appareil.

Nous concluerons en indiquant les perfectionnements possibles.

CHAPITRE I

PRINCIPE DE LA SPECTROSCOPIE DE POLARISATION

PAR EFFET FARADAY

I. PRINCIPE DE LA SPECTROSCOPIE DE POLARISATION PAR EFFET FARADAY RESONNANT.

Après une présentation simplifiée de la méthode et l'analyse rapide d'un résultat expérimental nous établirons, en usant de la précédente analyse, le modèle décrivant la forme des signaux observables et envisagerons une technique de sélection et de détection de ces signaux.

Nous discuterons ensuite des performances et limites de notre méthode, compte tenu du type de détection utilisée et terminerons par le développement de quelques idées permettant d'améliorer la sensibilité de la dite méthode.

I.1. Principe élémentaire.

Notre méthode s'inspire des expériences de spectroscopie de polarisation par Laser sur un gaz à basse pression {1}, {2}, {3}. Un schéma de principe en est donné figure 1.

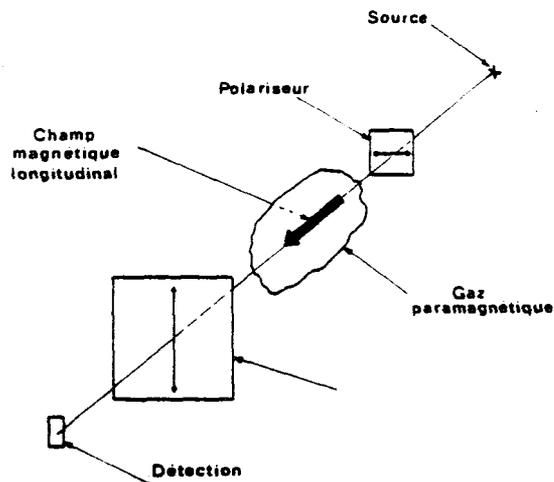


FIGURE 1 : Schéma de principe.

Une onde électromagnétique, supposée plane, traverse successivement un polariseur, une cellule d'interaction dans laquelle se trouve un échantillon, un analyseur, pour atteindre un détecteur.

Nous envisageons le cas où le polariseur et l'analyseur sont croisés et parfaits.

Après la traversée de la cellule d'interaction, deux cas peuvent se présenter :

1°) L'onde incidente n'a pas subi de modification de polarisation. Le signal détecté derrière l'analyseur est alors nul. Le détecteur ne recevant aucune lumière, nous obtenons un fond noir.

2°) L'onde incidente a subi une modification de polarisation. Le signal détecté derrière l'analyseur apparaît sur le fond noir.

Cette modification de polarisation correspond, dans le cas général, au passage de la polarisation rectiligne, imposée par le polariseur, à une polarisation elliptique, d'axes quelconques, dont nous pouvons considérer deux cas particuliers :

- a) Conservation de la polarisation rectiligne avec rotation de la direction de polarisation. On parle, dans ce cas, de pouvoir rotatoire. Ce pouvoir de rotation est associé à un effet de biréfringence circulaire.
- b) Passage de la polarisation rectiligne à la polarisation elliptique, de grand axe confondu avec la direction de la polarisation incidente. On parle alors de dichroïsme circulaire.

Cette modification de polarisation peut être due à la constitution même de l'échantillon étudié ; on parle alors de pouvoir rotatoire et de dichroïsme circulaire naturel {4}. Elle peut aussi être induite par un champ statique extérieur, on parle alors :

- D'effet Kerr dans le cas d'un champ électrique transversal, c'est-à-dire perpendiculaire à la direction de propagation de l'onde {4}.
- D'effet Cotton-Mouton dans le cas d'un champ magnétique transversal {4}.
- D'effet Faraday dans le cas d'un champ magnétique longitudinal, c'est-à-dire parallèle à la direction de propagation du rayonnement incident {5}.

L'étude de ces trois effets a été reprise dernièrement par TOBIAS et BALAZS {6}.

La modification de polarisation peut aussi être induite par un deuxième champ électromagnétique résonnant et saturant qui produit une anisotropie optique de l'échantillon {1}, {2}, {3}, {7}.

Dans le cas où l'on utilise un champ magnétique longitudinal et un rayonnement incident de fréquence voisine de celle d'une transition moléculaire de l'échantillon en l'absence de champ magnétique, on parle d'effet Faraday résonnant et de dichroïsme circulaire résonnant {8}.

C'est ce dernier point qui fait l'objet de notre étude et nous parlerons dorénavant d'effet Faraday résonnant et de dichroïsme circulaire résonnant.

Transposant au cas des ondes millimétriques, nous devons légèrement modifier le modèle.

Nous présentons figure 2 le schéma simplifié qui s'y rattache. Nous utilisons comme source un klystron (K). Polariseur et analyseur sont cons-

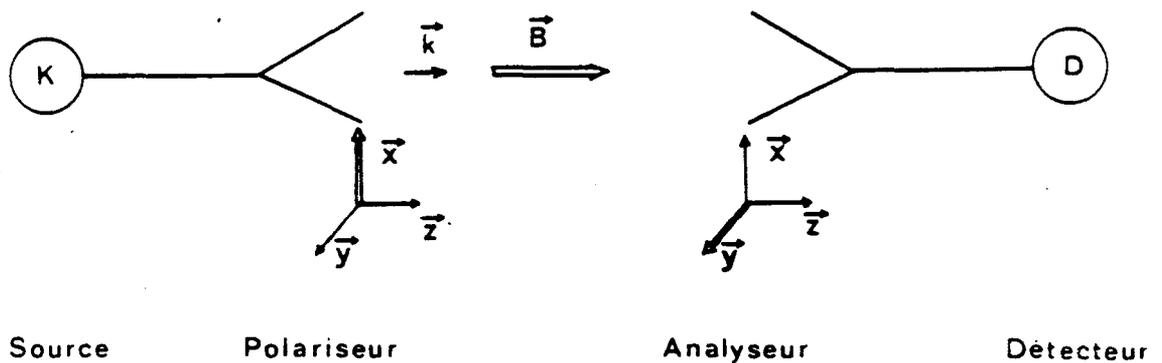


FIGURE 2 : Schéma de principe. Spectromètre microonde de polarisation.

titués chacun d'un guide d'onde rectangulaire, excité dans son mode fondamental, couplé à un cornet ; la polarisation est imposée par la forme du guide et du cornet. Un solénoïde enroulé autour de la cellule d'interaction permet de soumettre le gaz à un champ magnétique longitudinal.

Cette transposition nécessite cependant deux remarques :

1.- La détection, effectuée sur fond noir, diffère du cas précédent ; en effet, en optique seule l'intensité du rayonnement est détectée, dans notre cas, nous utilisons une détection hétérodyne qui fournit un signal proportionnel à l'amplitude du champ électrique qui traverse l'analyseur.

2.- L'obtention d'ondes parfaitement polarisées est beaucoup plus difficile dans le domaine microonde que dans le domaine optique ; de plus, la notion d'onde plane est plus difficilement acceptable. Nous conviendrons cependant qu'il en est ainsi, en première approximation et utiliserons dans tout ce qui suit la notion d'onde plane parfaitement polarisée.

Comme indiqué précédemment, nous ne nous intéressons qu'à l'effet Faraday résonnant et au dichroïsme circulaire résonnant. Ces deux effets vont nous permettre d'étudier les transitions de rotation des molécules paramagnétiques présentant une structure Zeeman. Cependant, l'orientation du champ magnétique est telle que les seules transitions observables sont du type $\Delta M = \pm 1$ avec M projection du moment cinétique J de la molécule sur la direction du champ magnétique [9].

Nous travaillons à fréquence de source fixe, voisine de la fréquence de la transition étudiée. Par balayage de champ magnétique, nous amenons successivement en résonance avec le rayonnement les composantes de la transition.

Une première étude effectuée sur la transition $J, N: 1, 0 \rightarrow 2, 1$ du radical libre $^{34}\text{S}^{16}\text{O}$ dont la fréquence de transition en absence de champ magnétique est $\nu_0 = 62074$ MHz, nous a permis d'obtenir l'enregistrement présenté figure 3. Pour cette étude, la fréquence de source, ν_S , a été choisie telle que $\nu_S = \nu_0 + 2$ MHz. Cet enregistrement, effectué en balayage de champ, présente deux formes d'absorption inversées l'une par rapport à l'autre relativement au zéro de champ magnétique ; chaque forme étant en fait composée de plusieurs composantes non résolues.

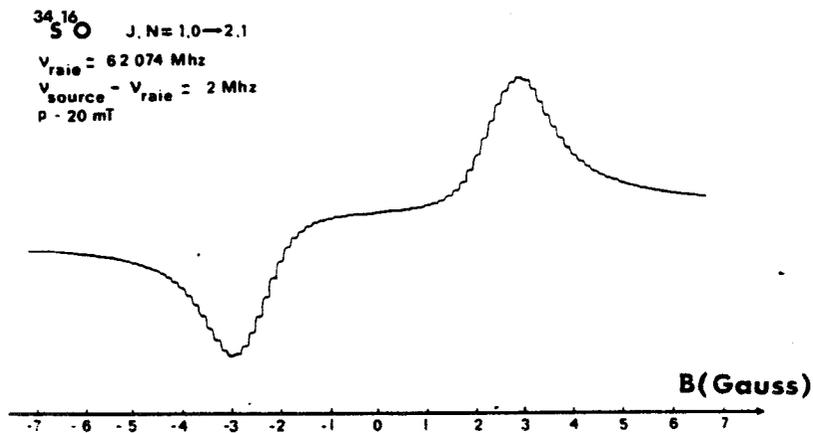


FIGURE 3 : Courbe expérimentale obtenue sur $^{34}\text{S}^{16}\text{O}$

Une interprétation de cet enregistrement peut être donnée en considérant le cas simple d'une transition du type $J : 0 \rightarrow 1$ pour une molécule paramagnétique. Comme cela est usuel dans le domaine microonde, nous négligeons l'élargissement Doppler.

L'onde incidente de fréquence ν_S et d'amplitude complexe \vec{E}_0 , polarisée rectilignement à la sortie du polariseur et se propageant suivant \vec{Z} , peut être décomposée en deux composantes circulaires, notées σ^+ et σ^- , d'expressions complexes :

$$\vec{E}^{\pm} = \frac{\vec{E}_0}{\sqrt{2}} \vec{e}^{\pm} \quad (1)$$

où $\vec{e}^{\pm} = \frac{\vec{x} \pm i\vec{y}}{\sqrt{2}}$ sont les vecteurs définissant les polarisations circulaires σ^+ et σ^- relativement au trièdre direct $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$.

En présence du champ magnétique longitudinal, la transition se décompose en deux composantes Zeeman du type $\Delta M = \pm 1$. Pour la transition $\Delta M = -1$ seule est affectée la composante σ^- du rayonnement, et, de la même façon, pour $\Delta M = +1$, seule la composante σ^+ est affectée.

Pour une valeur donnée du champ magnétique l'interaction, entre le rayonnement et le système moléculaire, se traduit par des absorptions en général différentes sur les deux composantes du champ microonde incident. En considérant l'absorption comme linéaire, nous pouvons écrire le champ électrique dans la cellule sous la forme :

$$\vec{E}^{\pm}(z) = \vec{E}_0 e^{-\alpha^{\pm} z} \vec{e}^{\pm} \quad (2)$$

avec α^+ et α^- les coefficients d'absorption associés à σ^+ et σ^- . A la sortie de la cellule, de longueur l , le champ s'exprime suivant

$$\begin{aligned} \vec{E}(l) &= \vec{E}^+(l) + \vec{E}^-(l) \\ &= \left(e^{-\alpha^+ l} \vec{e}^+ + e^{-\alpha^- l} \vec{e}^- \right) \frac{\vec{E}_0}{\sqrt{2}} \end{aligned} \quad (3)$$

Si on se limite au cas du milieu optiquement fin ($\alpha^{\pm} l \ll 1$) :

$$\vec{E}(l) = \frac{\vec{E}_0}{2} \left\{ \vec{x} \left[2 - (\alpha^+ + \alpha^-) l \right] - i\vec{y} (\alpha^+ - \alpha^-) l \right\} \quad (4)$$

L'analyseur étant orienté suivant \vec{y} , le champ transmis est proportionnel à $-i \frac{\epsilon_0}{2} (\alpha^+ - \alpha^-) \ell$, donc à la différence des absorptions sur les deux composantes, alors que dans le cas classique (analyseur et polariseur parallèles), nous obtenons un champ transmis proportionnel à $\epsilon_0 \left\{ 1 - \frac{(\alpha^+ + \alpha^-) \ell}{2} \right\}$, donc un signal utile proportionnel à la somme des absorptions sur les deux composantes du champ incident.

Pour la transition considérée, à savoir la $J : 0 \rightarrow 1$, le déplacement Zeeman, sous l'action du champ magnétique, est le même, au signe près, pour les composantes $\Delta M = \pm 1$; nous le noterons γB avec γ le rapport gyromagnétique associé à la transition et $B = \vec{B} \cdot \vec{z}$ l'amplitude du champ magnétique. Les pulsations de résonance sont données par :

$$\omega^\pm = \omega_0 \pm \gamma B \quad (5)$$

En choisissant la pulsation de source (ω_s) différente de la pulsation de transition en champ nul (ω_0), nous pouvons, par l'action du champ magnétique, amener successivement chaque composante de la transition en résonance avec le rayonnement incident. Ceci se traduit par une absorption du rayonnement pour la composante considérée $\Delta M = +1$ ou -1 , donc par une diminution d'amplitude de la composante circulaire de champ associé

$$(\sigma^+ \text{ ou } \sigma^-), \text{ la résonance est obtenue pour } B = \pm \frac{\omega_s - \omega_0}{\gamma} = \pm B_0 \quad (6).$$

Dans le cas où $|\omega_s - \omega_0| \gg \Delta\omega_{\text{hom}}$, avec $\Delta\omega_{\text{hom}}$ désignant l'élargissement collisionnel, nous obtenons deux formes d'absorption, de signe contraire, bien séparées.

Ceci est illustré par la figure 4 pour laquelle $\omega_s > \omega_0$.

Par extrapolation, dans le cas de J élevés, en se plaçant toujours dans le cadre de l'absorption linéaire, nous pouvons considérer que les couples

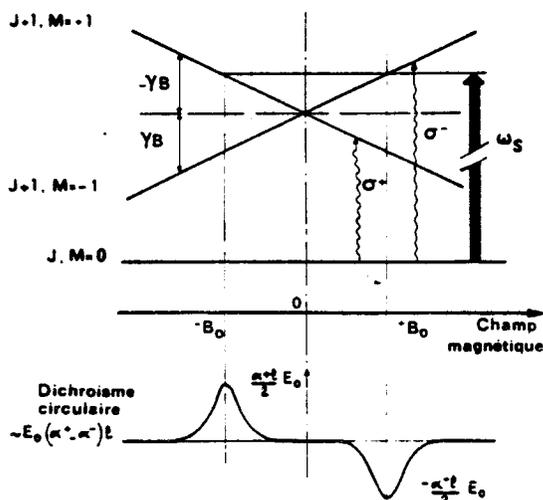


FIGURE 4 : Diagramme de niveaux et "figure" d'absorption en spectroscopie de polarisation.

de transition du type $\Delta M = \pm 1$ sont indépendants et envisager l'obtention d'un signal comparable au précédent, fonction impaire du champ magnétique, de composantes séparées ou non, conformément au résultat expérimental présenté figure 3.

I.2. Calcul général.

Dans ce paragraphe, nous traitons d'une interaction gaz rayonnement du type dipolaire électrique, mais notre résultat s'applique également au cas d'un couplage dipolaire magnétique (oxygène). Nous envisageons le cas d'un champ électromagnétique faible (spectroscopie linéaire), et, à la différence du calcul précédent, les effets de biréfringence circulaire sont pris en compte.

Nous exprimons d'abord l'amplitude du champ transmis dans le cas idéal (polariseur et analyseur parfaits), nous discutons ensuite de la sélection des divers termes de champs avant d'aborder la forme des signaux obtenus.

I.2.1. Cas idéal.

Le développement du calcul est mené dans le formalisme matriciel utilisant la base complexe (\vec{e}^+, \vec{e}^-) {10} et en se référant au formalisme introduit par WIEMAN {11}. Ceci conduit à introduire les composantes circulaires gauche et droite du rayonnement incident (σ^+ et σ^-) supposé polarisé rectilignement suivant \vec{x} et se propageant dans la direction \vec{z} (figure 2).

A l'entrée de la cellule, le champ électrique s'exprime suivant $\vec{\mathcal{E}}_0 = \mathcal{E}_0 \vec{x}$; l'utilisation de la base complexe (\vec{e}^+, \vec{e}^-) permet d'écrire ce même champ sous la forme :

$$\vec{\mathcal{E}}_0 = \mathcal{E}_0^+ \vec{e}^+ + \mathcal{E}_0^- \vec{e}^-$$

avec

$$\begin{pmatrix} \mathcal{E}_0^+ \\ \mathcal{E}_0^- \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & -i \\ 1 & i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{E}_{x_0} \\ \mathcal{E}_{y_0} \end{pmatrix} \quad (7)$$

où $\mathcal{E}_{x_0} \equiv \mathcal{E}_0$, $\mathcal{E}_{y_0} \equiv 0$

L'interaction entre le rayonnement et le gaz est caractérisée par la susceptibilité complexe de ce dernier, χ , fonction de la pulsation de la source (ω) et du champ magnétique. Nous introduisons de ce fait χ^+ et χ^- de façon à rendre compte de l'interaction entre les composantes du champ incident (σ^+ et σ^-) et le gaz.

Les vecteurs d'ondes k^+ et k^- associés aux deux polarisations σ^+ et σ^- s'écrivent :

$$k^{\pm} = (1 + \chi^{\pm})^{1/2} \frac{\omega}{c} \simeq \left(1 + \frac{\chi^{\pm}}{2}\right) \frac{\omega}{c} \quad (8)$$

Cette expression permet d'exprimer le champ électrique dans la cellule, dans le plan d'abscisse z , sous la forme :

$$\begin{pmatrix} \mathcal{E}^+(z) \\ \mathcal{E}^-(z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A^+ & 0 \\ 0 & A^- \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{E}_0^+ \\ \mathcal{E}_0^- \end{pmatrix} \quad (9)$$

avec

$$A^{\pm} = e^{ik^{\pm}z} = e^{i\left(1 + \frac{\chi^{\pm}}{2}\right) \frac{\omega}{c} z} \quad (10)$$

A la sortie de la cellule, pour $z = \ell$, en recombinaison les deux composantes de champ suivant :

$$\begin{pmatrix} \mathcal{E}_x \\ \mathcal{E}_y \end{pmatrix} = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ i & -i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \mathcal{E}^+ \\ \mathcal{E}^- \end{pmatrix} ,$$

et en tenant compte de l'état de polarisation à l'entrée, nous obtenons :

$$\vec{\mathcal{E}}(\ell) = \frac{1}{2} \left[(A^+ + A^-) \vec{x} + i(A^+ - A^-) \vec{y} \right] \mathcal{E}_0 \quad (11)$$

Dans le domaine millimétrique, les absorptions et dispersions des gaz sont toujours suffisamment faibles pour que l'on puisse considérer le milieu comme optiquement fin, $|\chi^{\pm} \frac{\omega \ell}{c}| \ll 1$, ceci conduit en développant les exponentielles au premier ordre en $\chi^{\pm} \frac{\omega \ell}{c}$, à :

$$\vec{\mathcal{E}}(\ell) = \frac{1}{2} \left[\left\{ 2 + i(\chi^+ + \chi^-) \frac{\omega\ell}{2C} \right\} \vec{x} - (\chi^+ - \chi^-) \frac{\omega\ell}{2C} \vec{y} \right] \mathcal{E}(\ell) \quad (12)$$

où $\mathcal{E}(\ell)$ désigne le champ électrique en extrémité de cellule en absence d'interaction.

Devant l'analyseur, suivant \vec{x} et \vec{y} , nous obtenons pour expression des champs :

$$\mathcal{E}_x(\ell) = \left[1 + i \left(\frac{\chi^+ + \chi^-}{2} \right) \frac{\omega\ell}{2C} \right] \mathcal{E}(\ell) \quad (13)$$

$$\mathcal{E}_y(\ell) = - \left(\frac{\chi^+ - \chi^-}{2} \right) \frac{\omega\ell}{2C} \mathcal{E}(\ell) \quad (14)$$

Polariseur et analyseur étant croisés, seule la composante \mathcal{E}_y est transmise. Le champ détecté \mathcal{E}_a est donc proportionnel à \mathcal{E}_y et apparaît comme composé de deux termes en quadrature de phase :

$$\frac{\omega\ell}{2C} \mathcal{E}(\ell) \operatorname{Re} \left\{ \frac{\chi^+ - \chi^-}{2} \right\} = N \mathcal{E}(\ell) \quad (15)$$

qui rend compte de la modification d'indice du milieu, donc de l'effet Faraday résonnant ou biréfringence circulaire.

$$\frac{\omega\ell}{2C} \mathcal{E}(\ell) \operatorname{Im} \left\{ \frac{\chi^+ - \chi^-}{2} \right\} = A \mathcal{E}(\ell) \quad (16)$$

qui rend compte de la modification d'amplitude des composantes σ^+ et σ^- du rayonnement incident, donc du dichroïsme circulaire.

$$\text{Soit : } \mathcal{E}_a = -(N + iA) \mathcal{E}(\ell) \quad (17)$$

Nous utilisons une détection hétérodyne non phasée, de ce fait, les deux termes de champ sont détectés de même façon et donnent naissance, en général, à un signal composite.

Pour accéder à l'un des termes de champ il convient de le privilégier par rapport à l'autre. Cette sélection peut être envisagée en ajoutant au signal utile un certain niveau de champ en phase avec le terme de champ que l'on désire obtenir.

1.2.2. Sélection des termes de champ.

Supposons le système polariseur-analyseur légèrement décroisé, d'un angle θ tel que $\theta \ll 1$. Nous pouvons considérer, en nous référant à la figure 5, que le champ polarisé suivant \vec{y} n'est pas affecté par cette rotation mais qu'une partie du champ polarisé suivant \vec{x} traverse l'analyseur. Ce terme de champ, égal à $\mathcal{E}_x \sin \theta \simeq \mathcal{E}_x \theta$, est en phase avec le champ incident.

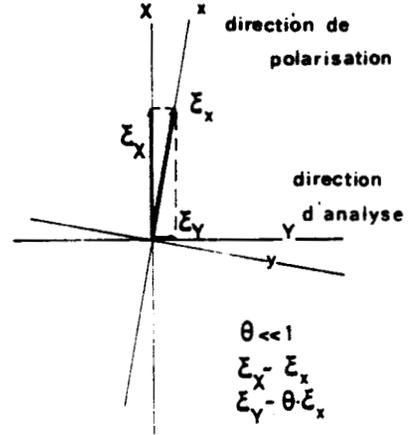


FIGURE 5 : Rotation de l'analyseur d'un angle θ .

Le champ résultant, derrière l'analyseur \mathcal{E}'_a est donc égal à

$$\mathcal{E}'_a = \mathcal{E}_y + \theta \mathcal{E}_x \simeq \mathcal{E}_y + \theta \mathcal{E}(\ell)$$

$$= \left\{ \theta - (N + iA) \right\} \mathcal{E}(\ell) \quad (18)$$

Ce résultat, présenté figure 6 sous forme d'un diagramme de phase où la phase de l'onde incidente est choisie comme origine, permet de rendre compte du rôle de la rotation θ dans la sélection des termes de champ. Ainsi, en partant de l'hypothèse du milieu optiquement fin, nous pouvons imposer

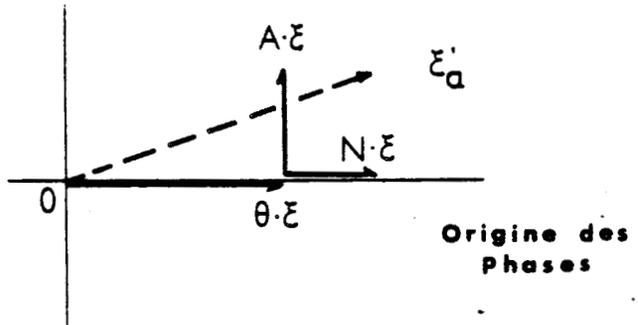


FIGURE 6 : Diagramme de phase.

$$\left| \frac{N + iA}{\theta} \right| \ll 1$$

et

$$\mathcal{E}'_a \simeq \left\{ \theta - N \right\} \mathcal{E}(\ell) \quad (19)$$

Nous observons uniquement, dans ce cas, le terme de champ en phase avec l'onde incidente, c'est-à-dire la biréfringence circulaire.

Le résultat expérimental de la figure 3 montre cependant que le terme de dichroïsme est effectivement observable ; il existe donc au niveau de la détection un champ en quadrature de phase avec $\mathcal{E}(\ell)$. Ce terme de champ ne peut être que d'origine interférentielle, c'est-à-dire qu'il est dû à la superposition de plusieurs ondes ayant suivi des chemins différents. De telles ondes existent car nous ne maîtrisons pas complètement l'extension transversale du faisceau d'ondes hyperfréquences.

Nous avons regroupé, figure 7, les trois types d'ondes pouvant exister :

- les composantes \mathcal{E}_1 et \mathcal{E}_2 traduisent la mauvaise définition de la polarisation et la réflexion sur les parois de la cellule d'interaction ; elles sont en principe affectées par le gaz et le champ magnétique (au 2^{ème} ordre)

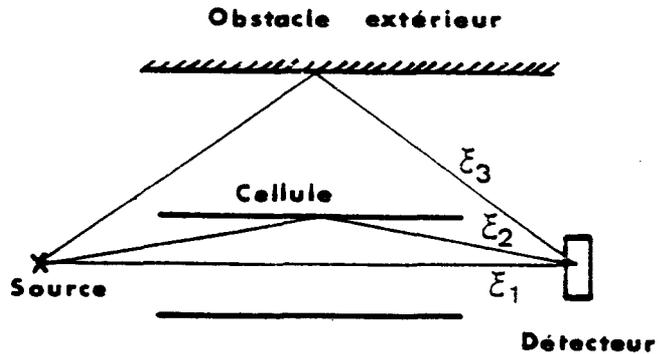


FIGURE 7 : Composante résiduelle de champ.

- La composante \mathcal{E}_3 est relative à l'extension du faisceau et à une possible réflexion de celui-ci sur les obstacles extérieurs. Appelons \mathcal{E}_r le champ résiduel, somme de ces trois champs ($\mathcal{E}_1, \mathcal{E}_2, \mathcal{E}_3$). Au premier ordre, ce champ, \mathcal{E}_r , n'est pas affecté par le gaz, mais il dépend fortement de la distance entre source et détecteur ainsi que de la position du spectromètre relativement aux obstacles (pour la partie \mathcal{E}_3). De manière générale, nous l'écrivons $\eta \mathcal{E}(\ell)$ où η est un coefficient complexe dépendant de la géométrie du spectromètre.

En notant \mathcal{E}_a'' le champ transmis, compte tenu de ce terme supplémentaire, nous obtenons :

$$\mathcal{E}_a'' = \left\{ \eta + \theta - (N + iA) \right\} \mathcal{E}(\ell) \quad (20)$$

L'analyse du diagramme de phase présenté figure 8 permet de comprendre comme s'effectue la sélection des signaux.

- Dans le cas où

$$|\theta + \text{Re } \eta| \simeq 0$$

et $|\text{Im } \eta| \gg |N|$ et $|A|$,

nous obtenons :

$$\epsilon_a'' = i \left\{ \text{Im } (\eta) - A \right\} \epsilon(\lambda) \quad (21)$$

Nous accédons, de ce fait, au terme de champ en quadrature de phase avec l'onde incidente, c'est-à-dire au dichroïsme circulaire.

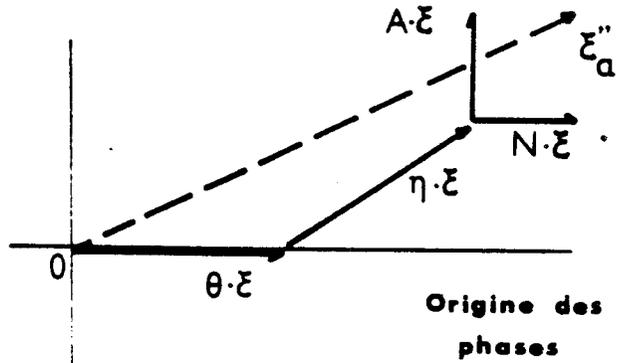


FIGURE 8 : Diagramme de phase.

Dans le cas où $|\theta + \text{Re } (\eta)| \gg |\text{Im } (\eta)|$, $|A|$, $|N|$,

$$\epsilon_a'' = \left\{ \theta + \text{Re } (\eta) - N \right\} \epsilon(\lambda) \quad (22)$$

Nous accédons, dans ce cas, au terme de champ en phase avec le champ incident, donc à la biréfringence circulaire.

Ainsi, par action sur θ ou sur la distance entre source et détection, nous pouvons observer, soit le dichroïsme circulaire, soit la biréfringence circulaire.

L'analyse précédente suggère que les différents champs qui interviennent ont des phases et des polarisations bien définies* (champs parfaitement cohérents). Dans ce cas, l'équation (20) montre qu'il est pos-

* Dans le cas de molécules obtenues dans une décharge électrique, il faut également prendre en compte le changement de polarisation de l'onde incidente par la rotation des charges électriques dans le champ magnétique (12). Cet effet est d'autant plus gênant qu'il évolue avec le champ magnétique.

Un calcul de rotation de la direction de polarisation basé sur un champ magnétique uniforme de 6 Gauss, une densité d'électrons libres de $10^8/\text{cm}^3$ (13), dans le cas d'une cellule de 1m de long et une fréquence de source de 60 GHz conduit à une rotation de polarisation de 4.10^{-7} rd. Dans le cas d'ions, la rotation est environ 10^6 fois plus faible.

Nous produisons nos molécules dans une décharge radio-fréquence extérieure à la cellule. De ce fait, la densité de charge à l'intérieur de la cellule est bien inférieure à celle utilisée pour le calcul. Nous pouvons donc négliger la rotation de polarisation induite par la présence de ces charges électriques.

sible, en absence de gaz, d'obtenir une extinction complète du champ détecté en ajustant la longueur du spectromètre de telle sorte que η soit purement réel et en réglant θ à la valeur $-\eta$. Bien entendu, le bruit de phase de la source, les fluctuations de chemin optiques et les dépolarisations aléatoires font que cette extinction n'est jamais parfaite. Cependant les très bonnes extinctions obtenues expérimentalement confirment la validité du modèle précédent.

1.2.3. Forme des signaux obtenus.

Il apparaît donc possible d'observer séparément des signaux liés soit à la biréfringence circulaire, soit au dichroïsme circulaire. Nous allons discuter maintenant de la forme de ces signaux dans le cas d'une transition de rotation entre deux niveaux J et J' .

Nous envisageons le cas d'une transition de rotation dont toutes les composantes sont considérées comme indépendantes et sans prendre en compte l'effet Doppler.

L'onde incidente est décomposée en deux composantes circulaires σ^+ et σ^- d'expression complexe $\vec{\mathcal{E}}^\pm = \mathcal{E} \vec{e}^\pm$ avec \mathcal{E} amplitude complexe du champ électrique polarisé suivant \vec{x} .

Les opérateurs qui caractérisent l'interaction entre le champ électromagnétique et la molécule sont notés $\hat{\vec{\mu}} \cdot \vec{\mathcal{E}}^+$ et $\hat{\vec{\mu}} \cdot \vec{\mathcal{E}}^-$ avec $\hat{\vec{\mu}}$ opérateur associé au moment dipolaire électrique ($\vec{\mu}$) de la molécule [11].

Les éléments de matrice non nuls de $\hat{\vec{\mu}} \cdot \vec{\mathcal{E}}^\pm$ s'expriment suivant :

$$\begin{aligned} \langle J', M+1 | \hat{\vec{\mu}} \cdot \vec{e}^+ | JM \rangle &= \langle J' || \lambda || J \rangle i \sqrt{2} U_y (M+1, M) \mu \\ \text{et } \langle J', M-1 | \hat{\vec{\mu}} \cdot \vec{e}^- | JM \rangle &= \langle J' || \lambda || J \rangle i \sqrt{2} U_y (M-1, M) \mu \end{aligned} \quad (23)$$

avec $\langle J' || \lambda || J \rangle$ l'élément de matrice réduit indépendant de M

$U_y (M+1, M)$ le cosinus directeur associé à l'orientation de $\vec{\mu}$ relativement au champ électrique.

μ la valeur du moment dipolaire électrique.

Ces deux expressions conduisent aux seules transitions, du type $\Delta M = \pm 1$.

Nous présentons, figure 9, un diagramme de niveaux où deux transitions de ce type sont connectées à un même niveau commun : $J, M \rightarrow J', M+1$ et $J, M \rightarrow J', M-1$. Nous supposons que l'effet Zeeman sur les niveaux d'énergie est linéaire et appelons γ (resp. γ') le facteur gyro-magnétique associé au niveau J (resp. J').

Les pulsations de transitions sont définies par :

$$\omega_M^\pm = \omega_0 + [(\gamma' - \gamma) M \pm \gamma'] B$$

ou encore, sous forme contractée :

$$\omega_M^\pm = \omega_0 + \Gamma^\pm(M) B \quad (24)$$

avec $\Gamma^\pm(M)$, le déplacement Zeeman associé aux deux transitions considérées, $M \rightarrow M \pm 1$, et ω_0 la pulsation de la transition en champ magnétique nul.

En négligeant l'effet Doppler, la susceptibilité complexe associée à chaque composante Zeeman a la forme classique :

$$\chi^\pm(M) = \frac{N \tau}{\hbar \epsilon_0} \frac{|\langle J', M \pm 1 | \hat{\mu} e^\pm | J, M \rangle|^2}{i + (\omega_s - \omega_M^\pm) \tau} \quad (25)$$

où τ est le temps de relaxation collisionnel et ω_s la pulsation de source.

En spectroscopie linéaire, la susceptibilité complexe est la somme de celles associées aux différentes composantes Zeeman,

$$\chi^\pm = \sum_{M=-J}^J \chi^\pm(M) \quad (26)$$

et la composante de champ relative à l'interaction gaz-rayonnement

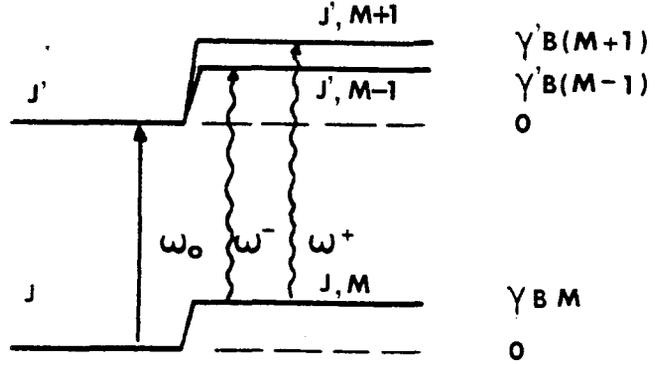


FIGURE 9 : Diagramme de niveaux

s'exprime, dans la direction d'analyse, suivant :

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_a &= -\frac{\chi^+ - \chi^-}{2} \frac{\omega \ell}{2C} \mathcal{E}(\ell) = -\sum_{M=-J}^{M=J} \left(\chi^+(M) - \chi^-(M) \right) \frac{\omega \ell}{4C} \mathcal{E}(\ell) \\ &= -(N + iA) \mathcal{E}(\ell) \end{aligned}$$

Dans le cas d'une transition de rotation du type $J=0 \rightarrow J'=J+1=1$, cette expression se simplifie. En utilisant les équations (23) et (24), nous obtenons :

$$\begin{aligned} \mathcal{E}_a &= 2\mu^2 \frac{N\tau}{\hbar \epsilon_0} |\langle J+1 \| \lambda \| J \rangle|^2 \frac{\omega \ell}{4C} \times \\ &\times \left\{ \frac{U_Y(1,0)}{i + (\alpha - \gamma' B)\tau} - \frac{U_Y(-1,0)}{i + (\alpha + \gamma' B)\tau} \right\} \times \mathcal{E}(\ell), \end{aligned}$$

avec $\alpha = \omega_S - \omega_0$.

Cette expression peut de nouveau être simplifiée en considérant que $U_Y(1,0) = U_Y(-1,0)$ {9} et en utilisant l'expression classique du coefficient d'absorption à la résonance, en champ nul, β .

$$\mathcal{E}_a = -\frac{\beta \ell}{4} \times \frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{i + (\alpha - \gamma' B)\tau} - \frac{1}{i + (\alpha + \gamma' B)\tau} \right\} \mathcal{E}(\ell) \quad (27)$$

$$\text{où } \beta = 2 \frac{N\tau}{\hbar \epsilon_0} \mu^2 \frac{\omega \ell}{C} \times |\langle \lambda \| \lambda \rangle|^2 \times |U_Y(1,0)|^2$$

De l'équation (27), nous pouvons déduire l'expression de A et N, ainsi :

$$A = \frac{\beta \ell}{2} g(\alpha, B) \quad \text{et} \quad N = \frac{\beta \ell}{2} f(\alpha, B)$$

avec :

$$\begin{aligned} g(\alpha, B) &= -\frac{1}{2} \left\{ \frac{1}{1 + (\alpha - \gamma' B)^2 \tau^2} - \frac{1}{1 + (\alpha + \gamma' B)^2 \tau^2} \right\} \\ f(\alpha, B) &= \frac{1}{2} \left\{ \frac{(\alpha - \gamma' B) \tau}{1 + (\alpha - \gamma' B)^2 \tau^2} - \frac{(\alpha + \gamma' B) \tau}{1 + (\alpha + \gamma' B)^2 \tau^2} \right\} \end{aligned} \quad (28)$$

fonctions exprimant l'évolution de l'amplitude des signaux relativement à l'absorption maximum.

Nous remarquons que f et g sont des fonctions impaires du champ magnétique et que $g(\alpha=0, B) \equiv 0$.

En examinant de plus près les expressions de A et N , nous voyons que le signal lié à A correspond à deux formes d'absorption inversées l'une par rapport à l'autre et qu'il disparaît lorsque la pulsation de source (ω_S) est égale à la pulsation de transition en champ nul (ω_0), nous voyons également que le signal lié à N correspond à deux formes de dispersion également inversées qui s'ajoutent pour $\alpha=0$ et donnent naissance à une seule forme de dispersion.

L'évolution des fonctions f et g en fonction de B a été étudiée dans le cas de la molécule d'oxygène, état \sum_3^- , transition $J, N: 0, 1 \rightarrow 1, 1$, nous présentons figure 10 et figure 11 les courbes correspondantes.

Notons que les résultats obtenus s'appliquent également au cas d'une transition entre états J et J' quelconques mais présentant le même effet Zeeman ($\gamma \approx \gamma'$)

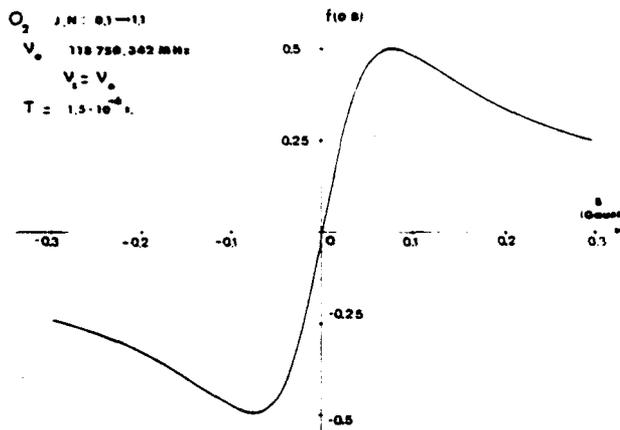


FIGURE 10 : Evolution de la fonction $f(0, B)$

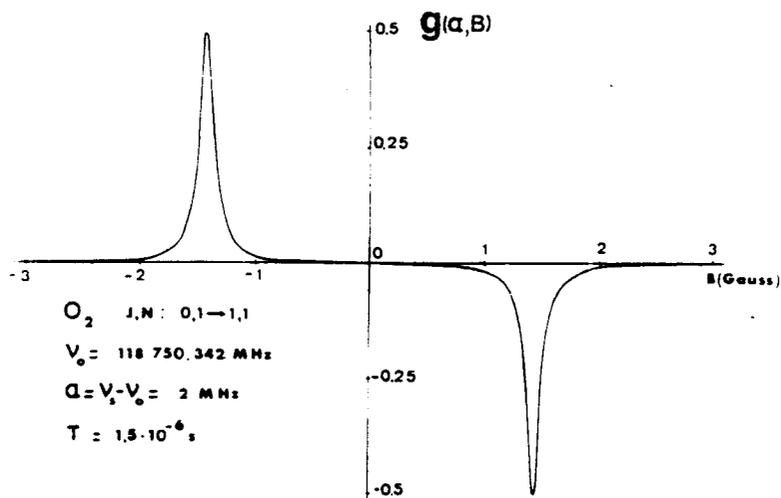


FIGURE 11 : Evolution de la fonction $g(\alpha, B)$

Dans le cas d'une transition de rotation $J \rightarrow J+1$ telle que $\gamma \neq \gamma'$, nous obtenons, pour expression du champ relatif à l'interaction, dans la direction d'analyse :

$$\begin{aligned}
 \mathcal{E}_a &= - \frac{X^+ - X^-}{2} \frac{\omega \ell}{2C} \mathcal{E}(\ell) \\
 &= -2\mu^2 \frac{N\tau}{\hbar \epsilon_0} |\langle J+1 \parallel \lambda \parallel J \rangle|^2 \frac{\omega \ell}{4C} \times \mathcal{E}(\ell) \\
 &\quad \times \sum_{M=-J}^J \left\{ \frac{|U_Y(M+1, M)|^2}{i + (\alpha - \Gamma^+(M) \cdot B) \tau} - \frac{|U_Y(M-1, M)|^2}{i + (\alpha - \Gamma^-(M) \cdot B) \tau} \right\} \quad (29)
 \end{aligned}$$

Cette expression peut également être simplifiée en considérant que

$$U_Y(M+1, M) = -U_Y(-M-1, -M) \quad \{9\}$$

$$\Gamma^+(M) = -\Gamma^-(M) = \Gamma(M)$$

d'où :

$$\begin{aligned}
 \mathcal{E}_a &= 2\mu^2 \frac{N\tau}{\hbar \epsilon_0} \cdot \frac{\omega \ell}{4C} \cdot |\langle J+1 \parallel \lambda \parallel J \rangle|^2 \times \mathcal{E}(\ell) \\
 &\quad \times \sum_{M=-J}^J |U_Y(M+1, M)|^2 \left\{ \frac{1}{i + (\alpha - \Gamma(M) \cdot B) \tau} - \frac{1}{i + (\alpha + \Gamma(M) \cdot B) \tau} \right\}
 \end{aligned}$$

ce qui s'écrit encore :

$$\mathcal{E}_a = -\frac{\beta \ell}{2} \mathcal{E}(\ell) \times \left\{ \frac{3}{4(J+1)(2J+1)(2J+3)} \right\} \times \sum_{M=-J}^J |U_Y(M+1, M)|^2 \left\{ \frac{1}{i + (\alpha - \Gamma(M)B)\tau} - \frac{1}{i + (\alpha + \Gamma(M)B)\tau} \right\} \quad (30)$$

avec β le coefficient d'absorption de la transition considérée, en champ nul et à la résonance, qui s'exprime suivant :

$$\beta = 2\mu^2 \frac{N\tau}{\hbar \epsilon_0} |\langle J+1 \| \lambda \| J \rangle|^2 \times \frac{\omega \ell}{4C} \times \sum_{-J}^J \left\{ |U_Y(M+1, M)|^2 + |U_Y(M-1, M)|^2 \right\}$$

Nous obtenons dans le cas présent :

$$A = \frac{\beta \ell}{2} g(\alpha, B)$$

$$N = \frac{\beta \ell}{2} f(\alpha, B)$$

avec

$$g(\alpha, B) = -\frac{3}{8(J+1)(2J+1)(2J+3)} \sum_{M=-J}^J |U_Y(M+1, M)|^2 \left\{ \frac{1}{1 + (\alpha - \Gamma(M)B)^2 \tau^2} - \frac{1}{1 - (\alpha + \Gamma(M)B)^2 \tau^2} \right\}$$

et

$$f(\alpha, B) = \frac{3}{8(J+1)(2J+1)(2J+3)} \sum_{M=-J}^J |U_Y(M+1, M)|^2 \left\{ \frac{(\alpha - \Gamma(M)B)\tau}{1 + (\alpha - \Gamma(M)B)^2 \tau^2} - \frac{(\alpha + \Gamma(M)B)\tau}{1 + (\alpha + \Gamma(M)B)^2 \tau^2} \right\}$$

deux fonctions qui expriment comme précédemment l'évolution de l'amplitude des signaux relativement à l'absorption maximum.

Les deux fonctions f et g sont des fonctions impaires du champ magnétique et comme pour le cas précédent ($J=0 \rightarrow 1$) nous remarquons que $g(\alpha=0, B) \equiv 0$.

Le signal lié à A correspond à une combinaison de formes d'absorptions, séparées en deux groupes inversés l'un par rapport à l'autre et tel que pour $\alpha=0$ $A \equiv 0$.

Nous pouvons constater, sur la figure 12, qu'il en est bien ainsi. Cette figure représente l'évolution de $g(\alpha, B)$ dans le cas de la transition de rotation $J, N = 2, 3 \rightarrow 3, 3$ de O_2 pour $\alpha = 1$ MHz, sans prendre en compte l'effet Doppler.

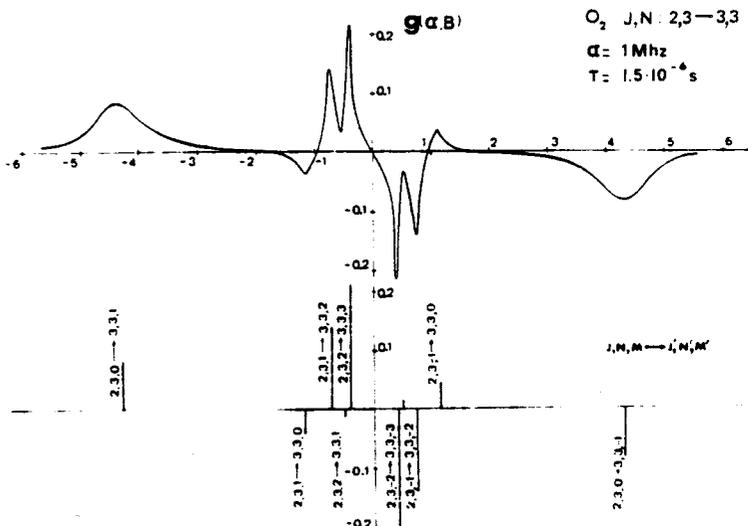


FIGURE 12 : Evolution de la fonction $g(\alpha, B)$

Le signal lié à N correspond à une combinaison de forme de dispersion séparées en deux groupes inversés l'un par rapport à l'autre. Ce signal est lié à la biréfringence circulaire. Comme précédemment, nous pouvons constater, sur la figure 13, que pour $\alpha=0$ les deux groupes se combinent pour donner naissance à un signal de dispersion associé à l'effet Faraday résonnant. Cette figure représente l'évolution de $f(\alpha, B)$ pour $\alpha=0$, dans le cas de la transition de rotation $J, N = 2, 3 \rightarrow 3, 3$ de O_2 , sans prendre en compte l'effet Doppler.

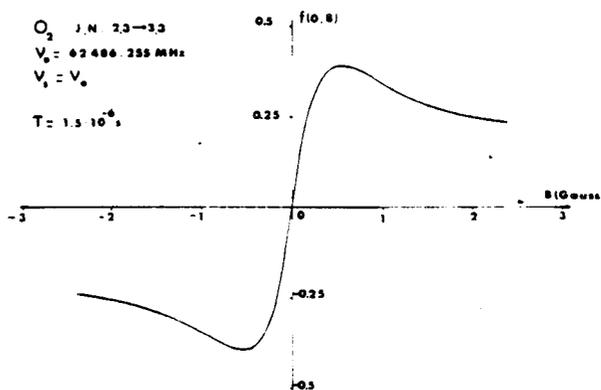


FIGURE 13 : Evolution de la fonction $f(0, B)$.

L'observation du signal de biréfringence circulaire pour une fréquence de source égale à la fréquence de la raie en champ nul présente l'avantage de cumuler toutes les composantes de la transitions (en $\Delta M = \pm 1$). Cette particularité permet d'utiliser notre méthode pour déterminer les fréquences de transitions de rotation, à condition que la réduction d'amplitude du signal ne soit pas trop importante lorsque J augmente. Une étude de l'évolution de l'amplitude maximale de $f(\alpha, B)$ en fonction de J pour $\alpha = 0$, effectuée sur O_2 état $\sum^3 g$ et présentée figure 14, a permis de constater une évolution lente de cette amplitude maximale.

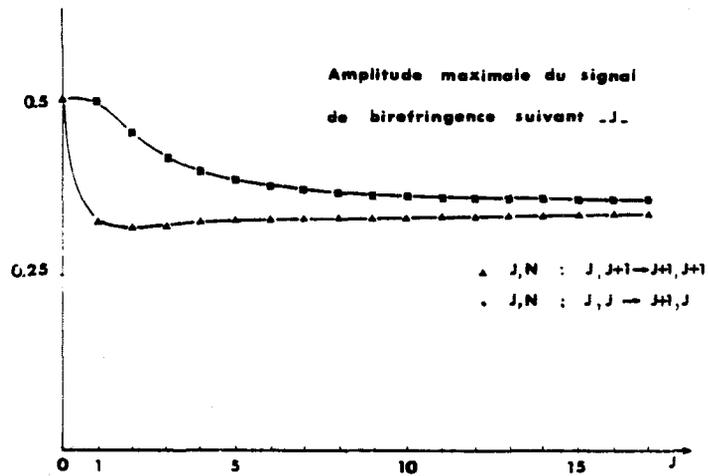


FIGURE 14 : Evolution du maximum de $f(0, B)$ en fonction de J .

Pour de grandes valeurs de J , nous constatons que celle-ci tend vers une limite voisine de 0,35 alors qu'elle est de 0,5 pour $J=0$. L'amplitude maximale crête à crête est alors de 0,7 au lieu de 1. Nous verrons que cette particularité permet également de déterminer la valeur absolue de l'épaisseur optique du milieu étudié pour une transition donnée.

I.3. Sensibilité et résolution du spectromètre.

I.3.1. Sensibilité.

L'étude précédente des signaux fournis par le spectromètre de polarisation montre qu'il sont de l'ordre de $\frac{\beta l}{2} \mathcal{E}_0$ où βl est l'épaisseur optique du gaz et \mathcal{E}_0 le champ incident. Ces signaux sont donc comparables à ceux fournis par un spectromètre d'absorption conventionnel mais ils sont portés par un signal ramené de \mathcal{E}_0 à $\epsilon^{1/2} \mathcal{E}_0$ où ϵ est le coefficient d'extinction en puissance du spectromètre.

Cette circonstance est extrêmement favorable à l'utilisation d'une détection superhétérodyne, dans de bonnes conditions {14} {15}. Rappelons que, dans ce type de détection, on fait battre dans un mélangeur non linéaire, le signal à détecter et un fort signal fourni par un oscillateur local. Ce dernier amène le mélangeur dans la zone où la pente de conversion est élevée et quasi constante (détection linéaire en champ incident). La fréquence du battement ou fréquence intermédiaire (F.I.) est choisie suffisamment élevée pour bénéficier d'une réduction du bruit basse fréquence dominant en détection classique. L'importance de la dynamique du signal fourni par le spectromètre élude les difficultés souvent rencontrées dans la réalisation d'amplification F.I. à gain très stable. Bien qu'il soit extrêmement difficile de prévoir théoriquement le gain en facteur de bruit qui en résulte, FEHER {16} estime ce gain entre 6 à 10 db.

L'association du spectromètre de polarisation et d'une détection superhétérodyne présente d'autres avantages. Elle élimine en grande partie les bruits de source en amplitude puisque ceux-ci, pour un même signal utile, sont ramenés de ΔE_0 en spectrométrie classique à $\epsilon^{1/2} \Delta E_0$; ceci devrait permettre l'utilisation de sources millimétriques solides généralement écartées en raison de leur bruit d'amplitude. La détection superhétérodyne assure en outre une protection efficace contre le passage des parasites basse-fréquence dans la chaîne de détection, notamment du signal de modulation Zeeman utilisé.

En effet, bien que l'extinction réalisée (jusque 94 db) ne résulte pas seulement d'effets interférentiels comme dans les spectromètres à bras équilibrés {14}{15}, nous avons vu que ceux-ci jouaient un rôle

important. En conséquence, le coefficient d'extinction (ϵ) dépend fortement de la fréquence. Toutes les expériences que nous décrivons ont été effectuées à fréquence de source fixe en balayant le champ magnétique responsable de l'anisotropie circulaire. Cette disposition est usuelle en résonance magnétique.

I.3.2. Résolution des signaux.

La résolution des signaux est limitée par diverses causes d'élargissement. Nous pouvons envisager ces diverses causes dans le cadre de la spectroscopie linéaire.

a) Elargissement collisionnel (élargissement homogène)

Ce type d'élargissement a été pris en compte dans l'étude des signaux (I.1. et I.2.), il est proportionnel à la pression (2 à 40 kHz par millitorr selon les molécules).

b) Elargissement par inhomogénéité de champ magnétique.

Cet effet est fonction de l'amplitude du champ magnétique, il est lié au fait que l'enroulement créant le champ magnétique n'est pas "infini" et crée un champ magnétique non uniforme sur toute la zone d'interaction. Cet élargissement que nous pouvons appeler $\Delta\nu_B$ est relié à la non uniformité du champ par l'intermédiaire de l'effet Zeeman sur chaque niveau d'énergie, il est en principe différent pour chaque composante de la transition considérée.

Notre technique utilise le balayage de champ magnétique au voisinage du champ nul. L'amplitude du champ est choisie de façon à déplacer les diverses composantes de la transition considérée de 3 à 4 fois la largeur de la transition.

Nous verrons que l'inhomogénéité de champ est de l'ordre de 1 % donc négligeable pour des champs magnétiques de quelques gauss.

c) Elargissement Doppler.

Ce type d'élargissement est indépendant de la pression, il devient prépondérant dans le cas de très basses pressions.

$$\Delta\nu_{D_{HMHM}} = \frac{2\pi\nu}{c} \sqrt{\frac{2kT}{M}} [\ln 2]^{1/2}$$

Dans le cadre de la spectroscopie linéaire classique, la résolution est limitée par l'élargissement Doppler. Nous montrerons par la suite que la disposition des niveaux permet, en présence d'une légère saturation l'observation des signaux subdoppler de croisement de niveaux stimulé .

I.4. Augmentation de la sensibilité du spectromètre par utilisation d'une structure résonante.

Dans l'étude précédente, développée en I.1. et I.2., nous avons isé utilisé le modèle des ondes progressives ; de ce fait, un seul passage de l'onde électromagnétique dans la cellule d'interaction était pris en compte. Nous savons que l'amplitude du signal utile détecté est proportionnelle à la "longueur" de la zone d'interaction. Une augmentation de la sensibilité peut donc être obtenue en augmentant le chemin parcouru par l'onde électromagnétique dans la zone d'interaction. Deux solutions euvent être envisagées :

- augmenter la longueur de la cellule,
- utiliser une cavité résonante.

La première solution nécessite un dispositif expérimental de grande dimension, ce qui n'est pas raisonnable si l'on tient compte des difficultés inhérentes à la définition des faisceaux microondes et à la stabilité mécanique d'une telle installation.

La seconde solution permet d'obtenir un dispositif expérimental de longueur raisonnable et de mieux maîtriser les faisceaux microondes.

L'utilisation d'une cavité résonante est possible car, contrairement au pouvoir rotatoire naturel, la polarisation rotatoire magnétique est cumulative sur un trajet aller-retour de l'onde électromagnétique dans la zone d'interaction {4}.

Pour expliquer ceci, il nous suffit de considérer l'interaction entre les composantes circulaires du rayonnement incident et le système moléculaire pour les transitions $\Delta M = \pm 1$. Nous savons que lors de l'interaction, une transition de type $M \rightarrow M+1$ est liée à l'existence d'une composante du rayonnement incident tournant dans le sens du "courant magnétisant" (courant fictif donnant naissance au champ magné-

tique extérieur). Le sens de propagation de l'onde électromagnétique n'intervient pas dans le processus. Par réflexion sur un miroir, orthogonal à la direction de propagation du champ électromagnétique, le sens de rotation de la composante circulaire est conservé. De ce fait, l'onde interagit de nouveau avec le milieu pour une transition du même type ($\Delta M = +1$) et la rotation de polarisation est double de celle obtenue pour un trajet simple.

Cette augmentation de rotation de polarisation, à chaque aller-retour de l'onde, permet d'augmenter l'amplitude du signal utile associé à la modification de polarisation. En augmentant le nombre de cycles on augmente d'autant la sensibilité du spectromètre.

Cette technique est largement utilisée en optique et spectroscopie laser pour l'étude de l'effet Faraday {17,18}.

Deux types de cavités sont envisageables :

- une cavité isotrope du type Perot Fabry, constituées de deux miroirs identiques, pour laquelle les rotations de polarisations s'ajoutent à chaque aller-retour (effet multipassage). Ce type de cavité conduit à une augmentation globale de la rotation Faraday.

- une cavité anisotrope, constituée d'un miroir isotrope et d'un miroir anisotrope réfléchissant sélectivement la polarisation incidente. Dans ce cas, la rotation de polarisation correspond sensiblement à celle obtenue pour un aller-retour de l'onde dans la cavité mais nous obtenons une augmentation globale de l'amplitude du champ détecté.

Nous présentons ci-après les deux types de cavité en précisant leurs avantages et inconvénients.

1.4.1. Cavité résonnante isotrope.

Dans sa conception, cette cavité est du type Perot-Fabry ; la sélection des polarisations s'effectue, comme présenté figure 15, à l'extérieur de la cavité . Les miroirs M_1 et M_2 qui constituent la cavité sont semi-transparents de coefficient de réflexion et transmission en champ r et t .

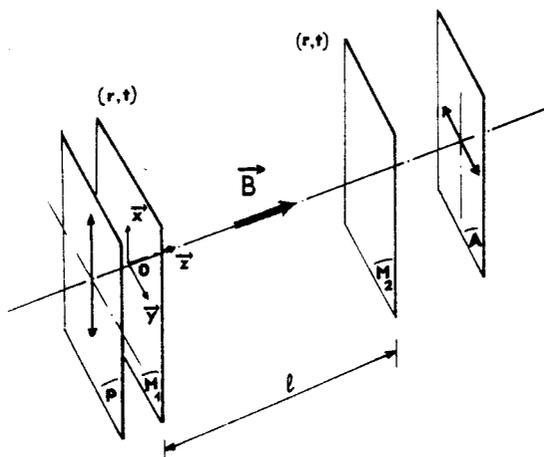


FIGURE 15 : Résonateur isotrope.

Toutes les pertes sont comptabilisées au niveau des miroirs (prises en compte dans la valeur de r).

La cavité est considérée comme résonnante, donc accordée en longueur, de façon à vérifier la condition de phase relative à l'onde incidente pour un parcours complet dans la cavité, à savoir :

$$\left\{ 2\varphi + \frac{2\omega l}{C} \right\} = 2N\pi \quad (32)$$

avec φ rotation de phase sur un miroir par réflexion,

$\frac{\omega l}{C}$ déphasage de l'onde lors du parcours $M_1 \rightarrow M_2$

N entier relatif.

Cette condition de phase sera supposée satisfaite dans la suite.

L'onde électromagnétique est assimilée à une onde plane polarisée suivant \vec{x} à la sortie du polariseur et d'amplitude E_0 devant le miroir M_1 ; la zone d'interaction occupe toute la cavité et le champ magnétique axial est fixe. L'utilisation du diagramme présenté figure 16, sur lequel est représentée l'évolution de la polarisation de l'onde électromagnétique à l'issue de chaque passage dans la cavité permet de visualiser l'effet des multiples passages.

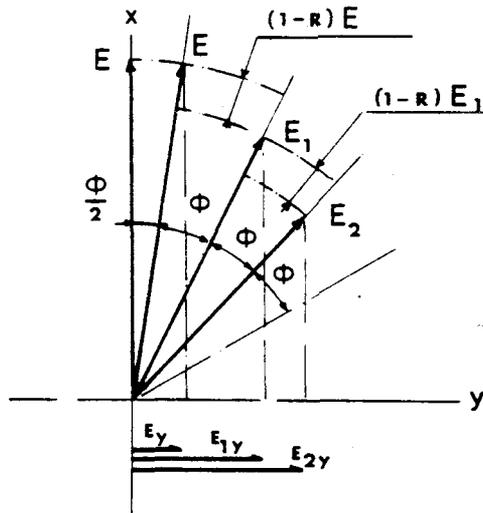


FIGURE 16 : Evolution de la polarisation dans le résonateur isotrope.

Nous envisageons le cas de la biréfringence pure.

Au niveau de M_1 , à la traversée du miroir, l'amplitude du champ incident devient $E = t E_0$. Lors du trajet $M_1 \rightarrow M_2$, l'onde subit une rotation de polarisation notée $\phi/2$, son amplitude est inchangée. Le trajet $M_2 \rightarrow M_1 \rightarrow M_2$ conduit à une nouvelle rotation de polarisation (ϕ) qui s'ajoute à la précédente et à une réduction de l'amplitude, soit :

$$E_1 = r^2 E = R E \quad \text{et} \quad \phi_1 = \frac{3}{2} \phi$$

avec r et R , le coefficient de réflexion en amplitude et en puissance d'un miroir et ϕ_1 la rotation totale de polarisation.

A l'issue d'un deuxième cycle, $M_2 \rightarrow M_1 \rightarrow M_2$, nous obtenons $E_2 = R^2 E$ et $\phi_2 = \frac{5}{2} \phi$; soit, pour le $n^{\text{ième}}$ cycle :

$$E_n = R^n E \quad \text{et} \quad \phi_n = \frac{2n+1}{2} \phi$$

Dans le cas d'une transmission égale pour les deux miroirs, nous obtenons, derrière l'analyseur, croisé relativement au polariseur :

$$E_y = t^2 E_0 \left[\sin \frac{\phi}{2} + R \sin \frac{3}{2} \phi + \dots R^n \sin \left(\frac{2n+1}{2} \phi \right) + \dots \right]$$

$$\text{soit} \quad E_y = T E_0 \int_0^{\infty} R^n \sin \left(\frac{2n+1}{2} \phi \right)$$

où E_0 est l'amplitude du champ électromagnétique devant le miroir M_1 , T (resp. t), le coefficient de transmission en puissance (resp. en champ) de l'un des miroirs.

En considérant $\phi \ll 1$, un calcul simple conduit à :

$$E_y = \frac{T}{1-R} \frac{1+R}{1-R} \frac{\phi}{2} E_0 = T_0 G \frac{\phi}{2} E_0 \quad (33)$$

où $T_0 = \frac{T}{1-R}$ représente le coefficient de transmission maximum, en champ de la cavité isotrope utilisée,
 $G = \frac{1+R}{1-R}$ représente le coefficient de "contraste" de la cavité, et $\frac{\phi}{2}$ la rotation de polarisation associée à un seul passage, donc au cas du spectromètre à onde progressive.

Il y aura gain en sensibilité dans le cas où $T_0 G > 1$

Pratiquement, la cavité se constitue de deux miroirs métalliques, sphériques, identiques, en regard l'un de l'autre, d'axes de symétrie confondus. Les couplages d'entrée et sortie sont effectués par l'intermédiaire de guides d'ondes rectangulaires excités dans leur mode fondamental, affleurant les surfaces internes des miroirs, en leur centre.

La sélection des directions de polarisation s'effectue par l'intermédiaire des guides de couplage.

Nous pouvons considérer, sans entrer dans le détail, que l'anisotropie introduite par la présence des guides de couplage est négligeable ; en effet, l'ouverture de guide est faible devant la dimension des miroirs $\left(\frac{S'}{S} \simeq 10^{-4} \right)$.

Nous pouvons raisonnablement espérer obtenir un coefficient de surtension (Q) de valeur $5 \cdot 10^4$ à 60 GHz, pour une cavité de 1 m de long.

En utilisant l'expression reliant le coefficient de surtension aux caractéristiques du résonateur [19], et en comptabilisant toutes les pertes au niveau des miroirs, à savoir :

$$\frac{1}{Q} = \frac{\lambda}{2\pi\ell} (1-R),$$

nous obtenons, pour $R \simeq 1$: $G \simeq \frac{Q\lambda}{\pi\ell} \simeq 100$

Pour obtenir un gain en sensibilité supérieur à 10, il est nécessaire d'obtenir une transmission T_0 inférieure à 10 db, ce qui est raisonnable.

Un calcul complet [17] développé au 1^{er} ordre de la susceptibilité complexe, dans le cas d'un résonateur isotrope, conduit à l'expression du champ électrique derrière l'analyseur, sous la forme :

$$\mathcal{E}_a = - \left\{ \frac{X^+ - X^-}{2} \cdot \frac{\omega l}{2C} \right\} T_0 G \mathcal{E}(l) \quad (34)$$

Cette expression diffère de celle obtenue équation (14) par le terme $T_0 G$ relatif à la cavité et introduit équation (33).

1.4.2. Cavité résonnante anisotrope.

Dans l'étude précédente, nous avons utilisé une cavité isotrope et l'effet multipassage pour augmenter la sensibilité. Il existe cependant une autre technique, basée sur l'utilisation d'une cavité anisotrope et donnant un résultat comparable.

Cette cavité est conçue comme une cavité Pérot-Fabry dont on remplace l'un des miroirs, isotrope, par un miroir anisotrope. Ce miroir anisotrope sert à la fois de réflecteur et d'analyseur.

Nous présentons, figure 17, le schéma de principe d'une telle cavité. La sélection de la polarisation à l'entrée de la cavité, est effectuée comme précédemment, à l'aide d'un polariseur (P), extérieur à la cavité. Le miroir M_1 est un miroir isotrope de coefficient de réflexion et transmission en champ r et t. Le miroir M_2 transmet intégralement la composante du rayonnement

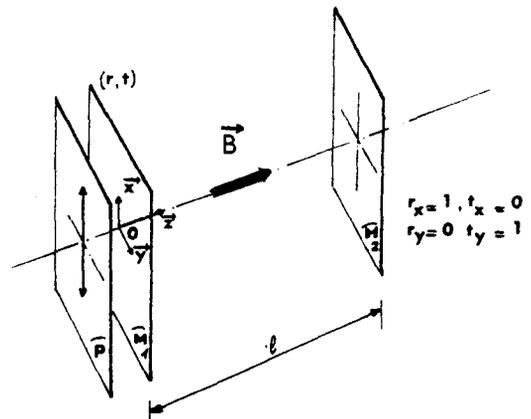


FIGURE 17 : Résonateur anisotrope.

électromagnétique polarisée orthogonalement à la direction de polarisation imposée par le polariseur ; l'autre composante, parallèle à la direction de polarisation imposée par le polariseur est réfléchi.

Un raisonnement semblable à celui tenu à propos de la cavité résonnante isotrope permet de déterminer le gain théorique d'un tel dispositif.

Comme précédemment, nous allons considérer que l'onde incidente est polarisée suivant \vec{x} à la sortie du polariseur et d'amplitude E_0 devant le miroir M_1 ; la zone d'interaction occupe toute la cavité et le champ magnétique est fixe. Seul le cas de la biréfringence circulaire est étudié et toutes les pertes seront comptabilisées au niveau des miroirs.

La condition de phase étant supposée vérifiée, nous allons nous intéresser à l'évolution de l'amplitude du champ électrique dans la cavité, en utilisant le diagramme présenté figure 18. Sur ce diagramme est représenté l'évolution de la polarisation de l'onde à l'issue de chaque passage dans la cavité.

A la traversée de M_1 , l'amplitude du champ électromagnétique devient $E = t E_0$, sa polarisation est inchangée. Durant le trajet ($M_1 - M_2$), l'onde incidente interagit avec le milieu et sa direction de polarisation tourne d'un angle $\phi/2$; son amplitude demeure inchangée, nous la notons E' ($\perp E$).

Au niveau de M_2 , la composante $E'_x = E' \cos \phi/2$ est réfléchiée alors que la composante $E'_y = E' \sin \phi/2$ est transmise ; E'_x retransverse donc la cavité pour effectuer le trajet ($M_2 - M_1 - M_2$). E'_x polarisée suivant \vec{x} subit durant ce trajet une rotation de polarisation $2 \times \frac{\phi}{2}$ et une réduction d'amplitude ; son amplitude devant M_2 est alors $E_1 = R E'_x$ où R désigne le pouvoir réflecteur en intensité des miroirs suivant la direction \vec{x} .

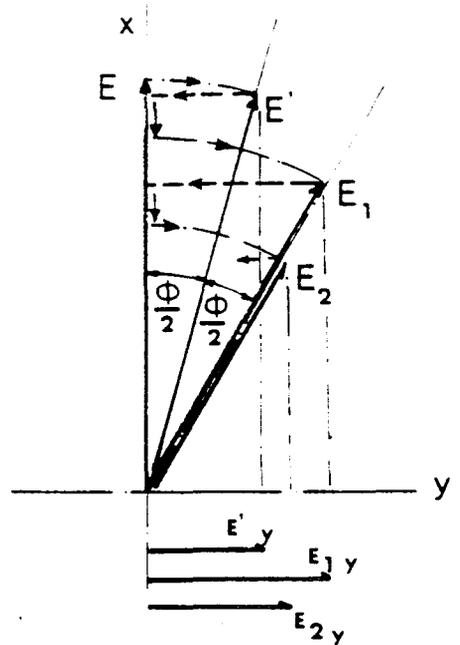


FIGURE 18 : Evolution de la polarisation dans le résonateur anisotrope.

De ce fait, $E_{1_x} = E'_x R \cos \phi = t E_0 \cos(\phi/2) R \cos \phi$

$$E_{1_y} = E'_x R \sin \phi = t E_0 \cos(\phi/2) R \sin \phi$$

avec t le coefficient de transmission en amplitude du miroir isotrope.

En prenant en compte tous les cycles possibles et en composant les vibrations qui sortent de la cavité suivant \vec{Y} , nous obtenons, pour la vibration sortante :

$$E_y = t E_0 \left[\sin \phi/2 + R \cos \phi/2 \sum_{M=0}^{\infty} (R \cos \phi)^n \sin \phi \right]$$

où la transmission du miroir anisotrope selon \vec{Y} a été prise égale à 1.

En considérant $\phi \ll 1$, on obtient :

$$E_y \simeq E_0 t \frac{1+R}{1-R} \frac{\phi}{2} = E_0 \frac{\phi}{2} t G \quad (36)$$

Un calcul complet, utilisant la décomposition de l'onde incidente en composantes circulaires conduit à l'expression du champ électrique derrière le miroir anisotrope :

$$\mathcal{E}_{ay} = -t G \frac{X^+ - X^-}{2} \frac{\omega l}{2C} \mathcal{E}(l) \quad (37)$$

Cette expression diffère de l'expression obtenue équation (14) par le terme tG relatif à la cavité anisotrope et introduit équation (36).

Avec les données numériques utilisées dans le cas du résonateur isotrope, nous obtenons un gain en sensibilité tG du même ordre de grandeurs (10 db).

Pratiquement, cette cavité se présente comme constituée d'un miroir métallique de courbure sphérique (M_1) identique à celui utilisé dans le cas de la cavité isotrope et d'une grille constituée de fils métalliques parallèles (M_2). Cette grille présente l'avantage de réfléchir toute onde électromagnétique dont la direction de polarisation est parallèle à celle des fils et de présenter une bonne transmission de l'autre polarisation {20}.

Le couplage d'entrée est effectué, comme précédemment indiqué pour la cavité isotrope, à l'aide d'un guide d'onde rectangulaire affleurant la face interne du miroir M_1 . Le couplage de sortie est réalisé à l'aide d'un cornet et d'un guide d'onde placé derrière la grille.

Avec un tel dispositif, nous espérons obtenir un gain en sensibilité identique à celui indiqué dans le cas du résonateur isotrope.

Remarque.

L'utilisation d'une cavité anisotrope n'est pas nouvelle, ce type de cavité est employé communément en optique laser, sous une forme différente. Nous pouvons citer, à titre d'exemple, le travail effectué par A. LEFLOCH et G. STEPHAN {21} concernant la mesure des rotations Faraday dans un laser anisotrope. L'expérience étant faite sur le milieu amplificateur lui-même, on bénéficie du gain en sensibilité des méthodes de spectroscopie intracavité.

CHAPITRE II

REALISATION

EXPERIMENTALE

II. REALISATION EXPERIMENTALE.

Un premier dispositif, conforme au schéma introduit figure 2, § I.1, utilisant comme polariseur et analyseur l'ensemble cornet-guide d'onde, a permis d'effectuer les études préliminaires et d'obtenir les premiers résultats expérimentaux.

La mise en oeuvre de ce dispositif ainsi que les modifications apportées en cours d'utilisation nous ont permis de cerner les différents problèmes inhérents à la réalisation d'une spectromètre performant. Nous relatons d'abord les différentes étapes qui ont permis de définir les caractéristiques du spectromètre dans sa version définitive puis nous discutons la solution proposée pour résoudre ces problèmes, tant sur le plan technique qu'électronique.

II.1. Etude préliminaire.

Le premier dispositif, présenté figure 19, est prévu pour travailler dans la gamme 50 à 70 GHz ; il comporte, fixées sur un banc de marbre, une partie émettrice (E), une cellule d'interaction (C) et l'ensemble de réception (R). L'idée de base étant d'obtenir un coefficient de croi-

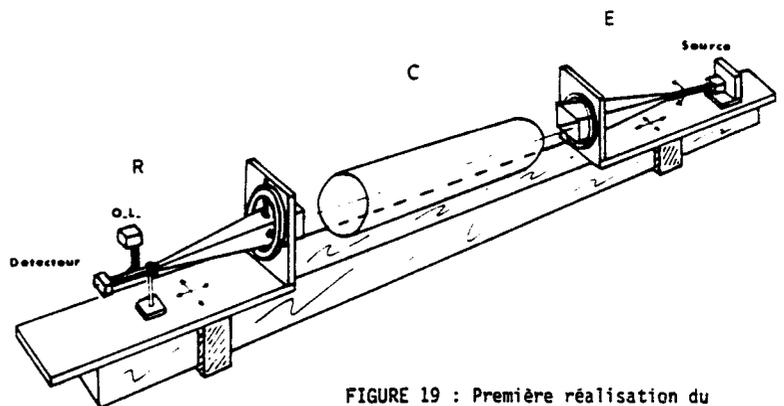


FIGURE 19 : Première réalisation du spectromètre de polarisation.

issement aussi grand que possible, nous avons utilisé dès le départ, pour équiper les parties émettrice et réceptrice, des cornets rectangulaires à grand gain, de lobe peu ouvert, qui assurent, en principe, une meilleure définition de la polarisation. Ces cornets, réalisés par nous-mêmes, en cuivre plié et soudé, ont été conçus avec un gain théorique de 30 à 40 db dans la gamme 50 à 70 GHz {22}.

La partie émettrice est donc équipée d'un tel cornet raccordé à un guide d'onde, travaillant dans son mode fondamental (TE_{01}), par l'intermédiaire d'une transition pyramidale. L'ensemble, jouant le rôle de polariseur, est relié à la source, constituée d'un klystron, par l'intermédiaire d'un coupleur qui prélève le signal nécessaire à la chaîne d'asservissement, en phase, de la source. L'ensemble polariseur-source est aligné par fixation dans deux dispositifs de rotation, de même axe, qui permettent de régler l'orientation de la direction de polarisation du faisceau microonde. Ces deux dispositifs de rotation sont fixés sur une plaque de Leucoflex elle-même fixée sur le banc de marbre, de longueur 3 m, par l'intermédiaire de deux platines de translation microcontrôle (platine de translation, MR 80-25 mm).

Ces deux platines assurent le positionnement de l'ensemble source-polariseur par déplacement transversal et axial (relativement au banc de marbre) au $\frac{1}{100}$ ème de millimètre. Le réglage en rotation de l'ensemble source-polariseur est assuré par un dispositif simple constitué d'une tige filetée solidaire du plateau, d'un index solidaire du dispositif tournant et d'un ressort de rappel.

La partie réceptrice comporte, comme la partie émettrice, un cornet grand gain, une transition pyramidale et un guide d'onde qui travaille également dans son mode fondamental. Cet ensemble, jouant le rôle d'analyseur, est relié au détecteur par l'intermédiaire d'un coupleur qui assure le battement entre l'onde issue d'un oscillateur local et celle de la source. L'ensemble est également fixé sur une plaque de Leucoflex reliée au banc de marbre par un dispositif de translation identique au précédent.

Têtes émettrices et réceptrices sont alignées sur un même axe, à l'aide d'un laser Hélium-Néon, afin d'obtenir les meilleures conditions de fonctionnement du spectromètre.

Notre dispositif de rotation permet de se placer à la transmission maximum (polariseurs parallèles) ou minimum (polariseurs croisés) et de mesurer ainsi le coefficient d'extinction ϵ (cf. 1-3(1)). Il permet également de repérer un faible écart angulaire θ par rapport au croisement.

La cellule d'interaction est constituée d'un tube de pyrex de 0.9 m de long et de diamètre intérieur 0.12 m fermé par deux plaques en Téflon (épaisseur 20 mm). Le diamètre du tube a été choisi de manière à réduire les pertes globales de transmission par rapport à une propagation purement aérienne {23}. Un enroulement effectué sur la cellule permet l'application aux gaz des champs magnétiques requis.

Les performances de cette première version de spectromètre de polarisation étaient médiocres. Le coefficient d'extinction n'était que de 30 db et le système était très sensible aux perturbations d'origines mécaniques et acoustiques. Indépendamment des imperfections mécaniques de cette première réalisation, ceci était dû, en grande partie, au taux d'onde stationnaire particulièrement élevé dans la cellule. Pour remédier à cela, nous avons complété le dispositif par une grille (Philips *) dont les fils sont parallèles à la polarisation du champ fourni par le cornet émetteur (polariseur). Son rôle est double :

- elle améliore les performances de l'analyseur en réfléchissant une grande partie du champ incident {20}.
- placée en incidence oblique, elle renvoie ce champ hors de la cellule réduisant de façon substantielle le taux d'ondes stationnaires dans celle-ci.

son emploi a permis d'améliorer d'environ 15 dB le coefficient d'extinction ϵ et de réduire fortement l'effet des oscillations mécaniques longitudinales.

Pour réduire l'extension du faisceau microonde, nous avons ensuite complété le dispositif précédent par deux lentilles en Téflon placées devant les cornets. Ces lentilles, plan-convexes, de distance focale 14 cm et rayon de courbure 8 cm, ont été réalisées au tour programmable (I.C.A.M. Lille). En associant grille, lentilles et cornets commerciaux (De Mornay Bonardi, D.B.E.S.20 - 20 dB), nous avons obtenu un coefficient d'extinction entre polariseur et analyseur croisé de -64 dB pour une perte d'insertion d'ensemble de 7 dB à 63 GHz.

* Une autre version de grille faite par une technique de circuits imprimés est décrite en II-3(6).

Dans ce montage, il nous était difficile de maîtriser les vibrations microphoniques et torsions dues au manque de stabilité des différentes parties du spectromètre. Nous avons pu constater, grâce au dispositif de double translation des deux têtes, que l'alignement de l'ensemble était très important pour obtenir une extinction maximale. Néanmoins, ce spectromètre a été utilisé pour des études préliminaires de forme de signaux et a permis de vérifier la possibilité de sélectionner l'une ou l'autre des composantes du signal utile (biréfringence ou dichroïsme).

Le dispositif complet, présenté figure 20, comporte :

- une source (klystron stabilisé en phase).
- un polariseur (guide d'onde-cornet).
- une cellule d'interaction (avec champ magnétique longitudinal).
- un analyseur (grille-cornet-guide d'onde).
- un détecteur (détection superhétérodyne sur mélangeur Schottky).
- un oscillateur local (libre ou stabilisé).
- une chaîne de traitement de signal).
- un générateur de champ magnétique (-7, +7 Gauss).

Les études effectuées sur ce dispositif peu stable, ont permis de cerner les différents problèmes inhérents à la réalisation d'un spectromètre performant. Pour cela, il nous faut :

- 1°) Aligner l'ensemble du dispositif et conserver cet alignement en cours de travail (rotation, translation).
- 2°) Améliorer le réglage en rotation du polariseur (précision et souplesse).

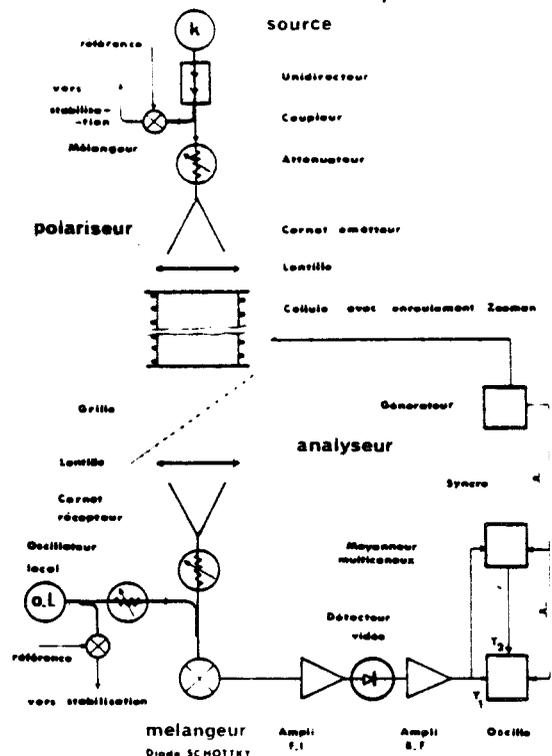


FIGURE 20 : Descriptif du spectromètre.

3°) Améliorer le réglage en translation longitudinale de têtes émettrices et réceptrices (précision, souplesse).

4°) Eliminer tout ou grande partie des vibrations et torsions dues au manque de stabilité du montage préliminaire.

5°) Assurer le positionnement des lentilles de téflon et de la grille.

A ceci, est venu s'ajouter l'idée d'utiliser une cavité résonnante isotrope et anisotrope dans le but d'augmenter la sensibilité du spectromètre. L'intégration de ce nouvel élément rend nécessaire l'exécution d'un dispositif polyvalent pouvant être utilisé comme spectromètre classique ou de polarisation avec ou sans cavité résonnante.

Le problème de l'alignement des têtes émettrice et réceptrice a été résolu en utilisant deux supports identiques, semi-rigides, à cage d'écureuil, pouvant être translattés et tournés de façon simple. Ce dispositif a été envisagé extensible, ce qui permet d'incorporer dans le montage des éléments nouveaux (multiplicateurs, unidirecteurs, etc ...). Sur ce dispositif, nous avons également prévu la fixation des lentilles de Téflon et leur orientation.

La mise en place de la grille et son orientation a nécessité la réalisation d'un support réglable possédant trois degrés de liberté en rotation.

Pour éliminer les vibrations et torsion du montage précédent, nous avons fait l'acquisition d'une poutre rigide et nous l'avons équipée d'une suspension pneumatique. Sur cette poutre, sont fixés les supports de tête émettrice et réceptrice ainsi que la cellule d'interaction.

L'obtention d'un champ magnétique homogène dans la cellule a nécessité l'élimination, autant que faire se peut, de toute masse ferromagnétique se trouvant au voisinage du spectromètre. Ainsi, toute la mécanique est réalisée en duralinox et en laiton. Pour la même raison, nous avons choisi une poutre de bois, renforcée par deux longerons en duralinox, pour supporter l'ensemble du spectromètre (poutre acquise pour une somme de 15 francs, auprès du Service technique et Voirie de la S.N.C.F. à Tourcoing).

II.2. Réalisation mécanique.

II.2.1. Support du spectromètre.

Comme indiqué précédemment (II-1), le support du spectromètre est constitué d'une poutre de bois de dimensions $4\text{ m} \times 0.35\text{ m} \times 0.15\text{ m}$, renforcée sur ses petits côtés par deux longerons de duralinox. Ce support, présenté figure 21, est équipé d'une suspension pneumatique constituée de deux groupes de deux chambres à air placées respectivement au $\frac{1}{4}$ et $\frac{3}{4}$ de la longueur de la poutre et reposant sur quatre caissons indépendants. Ces quatre chambres à air sont reliées entre elles par l'intermédiaire d'un ballast qui assure la mise en pression. L'ensemble se comporte comme un filtre mécanique passe bas dont la fréquence de coupure est de l'ordre du Hertz.

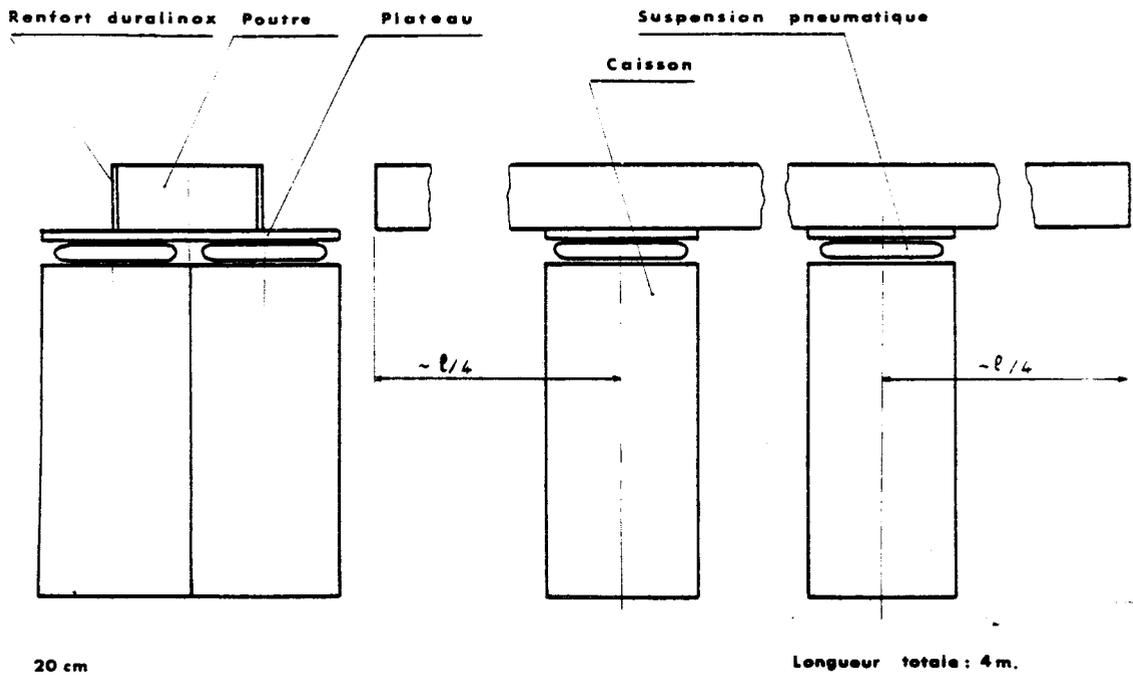


FIGURE 21 : Dispositif de lutte contre les vibrations.

II.2.2. Support de la partie émettrice.

Le support de la partie émettrice, présenté figure 22, est réalisé en duralinox et laiton. Il comporte :

- une cage d'écureuil constituée de quatre couronnes métalliques reliées entre elles par quatre barres cylindriques et maintenues en place par le pincement de ces barres. Les couronnes sont équipées d'index permettant d'assurer la mise en position et la fixation des éléments qui constituent les parties émettrices et réceptrices. Les barres, filetées en bout et équipées d'une autre couronne en Leucoflex, permettent de positionner une lentille de Téflon.

- deux plateaux verticaux servant de support à la cage et assurant sa rotation par l'intermédiaire de chemins à billes. Ces deux plateaux sont également maintenus à distance par le pincement de quatre autres barres cylindriques.

- un plateau horizontal sur lequel se déplace l'ensemble cage-plateaux verticaux. Le déplacement, parallèle à l'axe de la cage, est assuré par des chemins à billes. Le plateau horizontal est fixé sur la poutre de bois par des vis ; il peut être déplacé si besoin est.

- deux vis micrométriques assurant le positionnement en rotation et en translation de la cage relativement aux plateaux verticaux et au plateau horizontal. Ces vis micrométriques (microcontrôle, course 25 mm) assurent un positionnement au $\frac{1}{100}$ de millimètre. Compte tenu du diamètre du tambour (cage) au niveau de la zone d'action de la vis micrométrique nous obtenons une précision de réglage de 10^{-4} rd pour la rotation

La réalisation de ce dispositif appelle quelques commentaires. Ainsi, le maintien à distance des plateaux et couronnes par le pincement de barres cylindriques permet d'augmenter, si besoin est, la longueur de la cage. Ces mêmes barres filetées en bout et équipées de rotules permettent de placer l'un des miroirs métalliques constituant la cavité résonnante et de le positionner.

II.2.3. Support de la partie réceptrice.

Comme précédemment indiqué, le support de la partie réceptrice, présenté figure 23, a été réalisé identique à celui de la partie émettrice. Ceci nous permet de disposer de supports interchangeable et de diminuer la multiplicité des réalisations mécaniques.

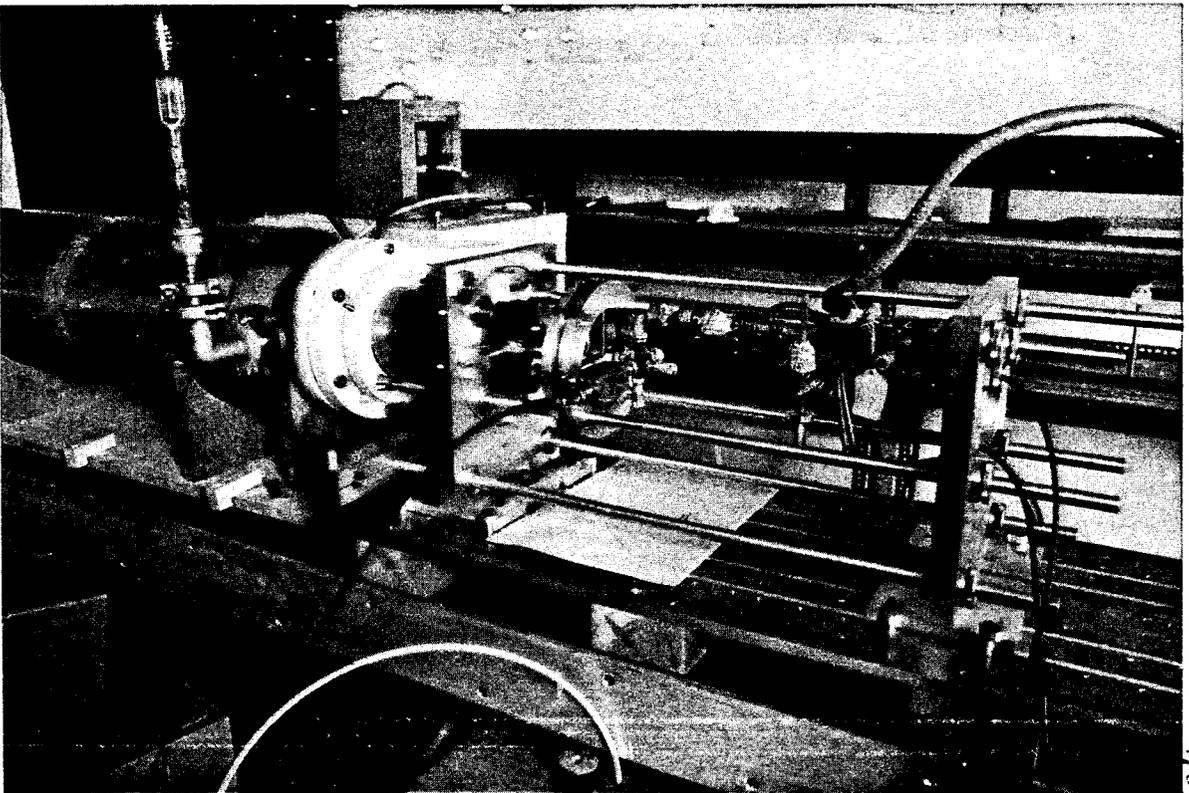
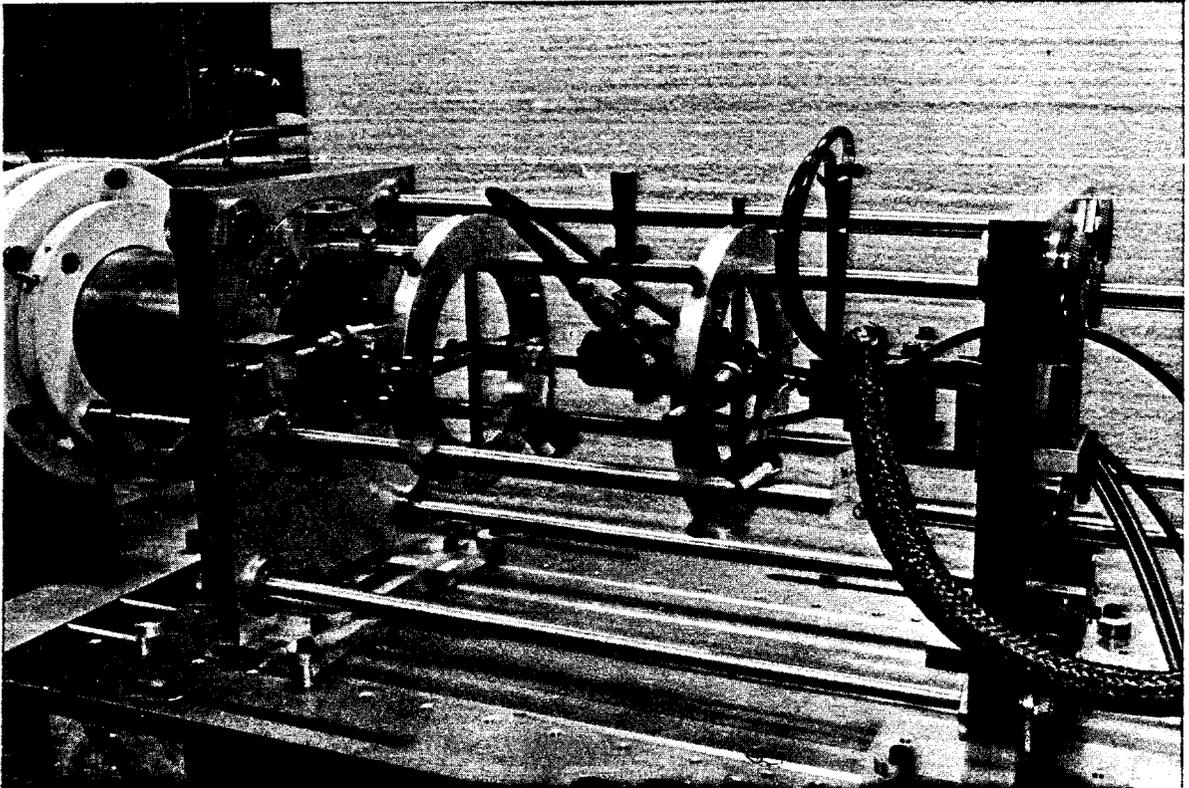


FIGURE 22 : Partie émission du spectromètre.

S
LILLE

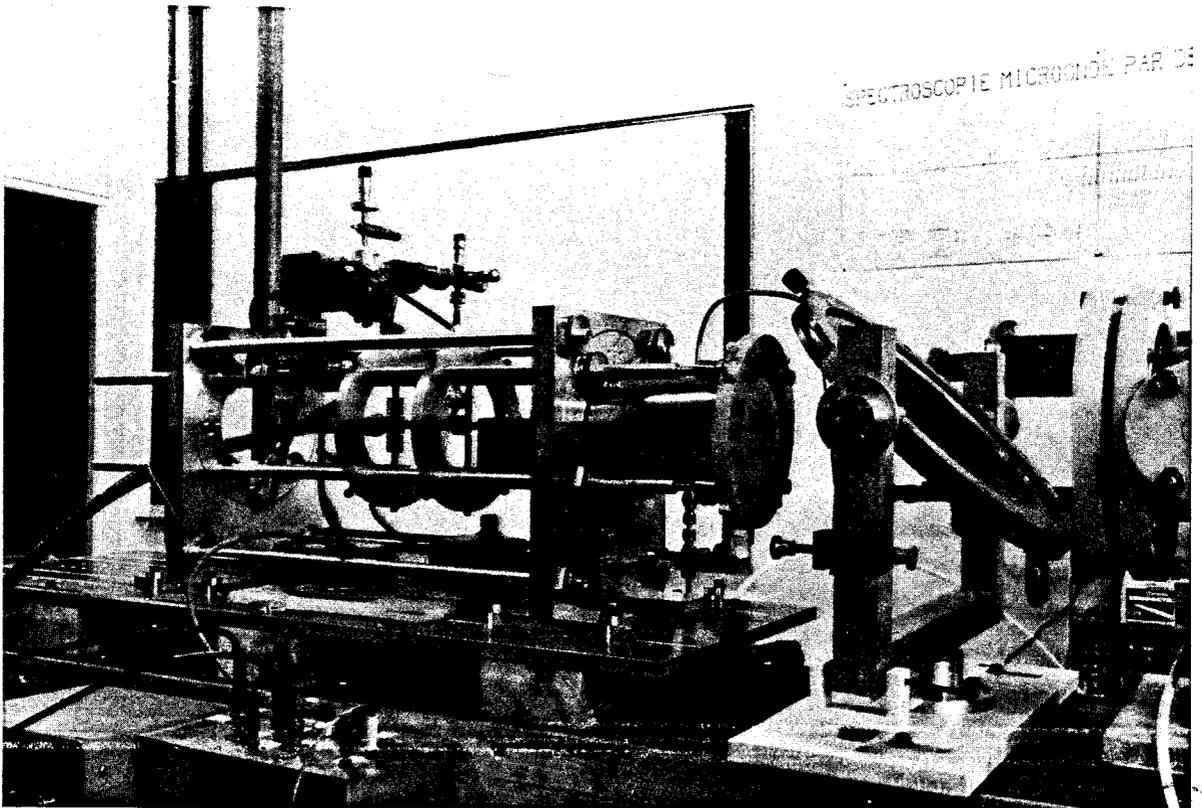
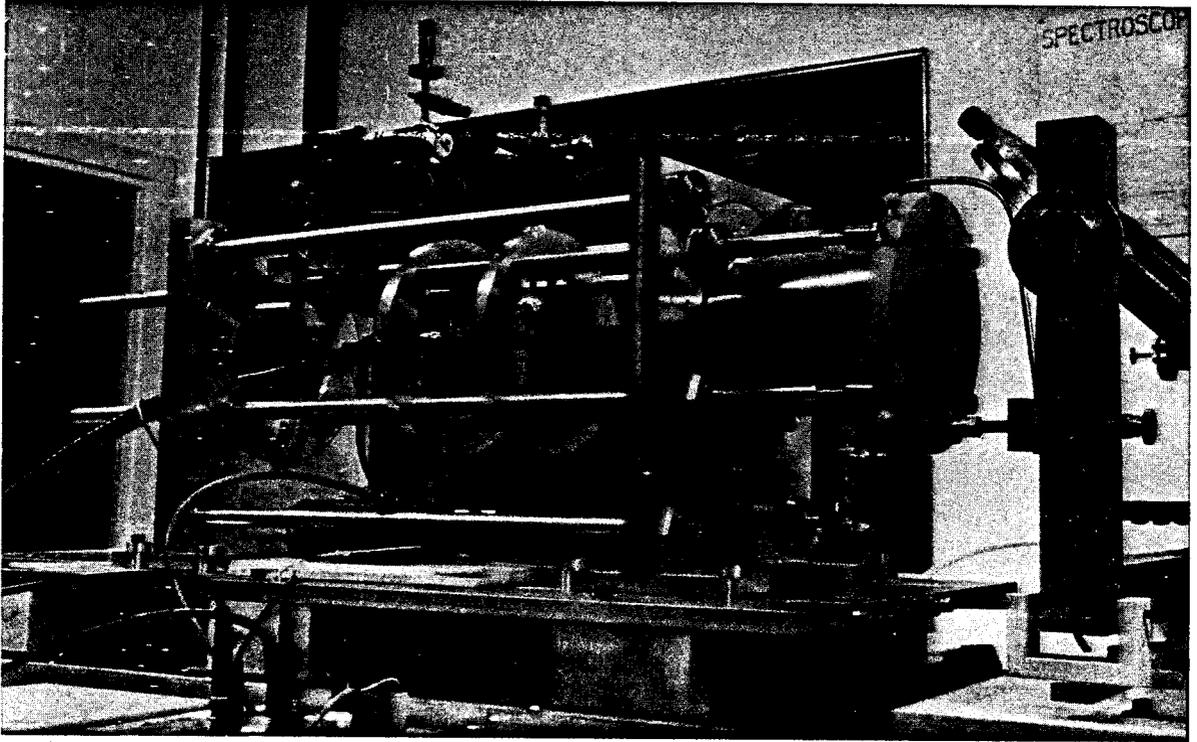
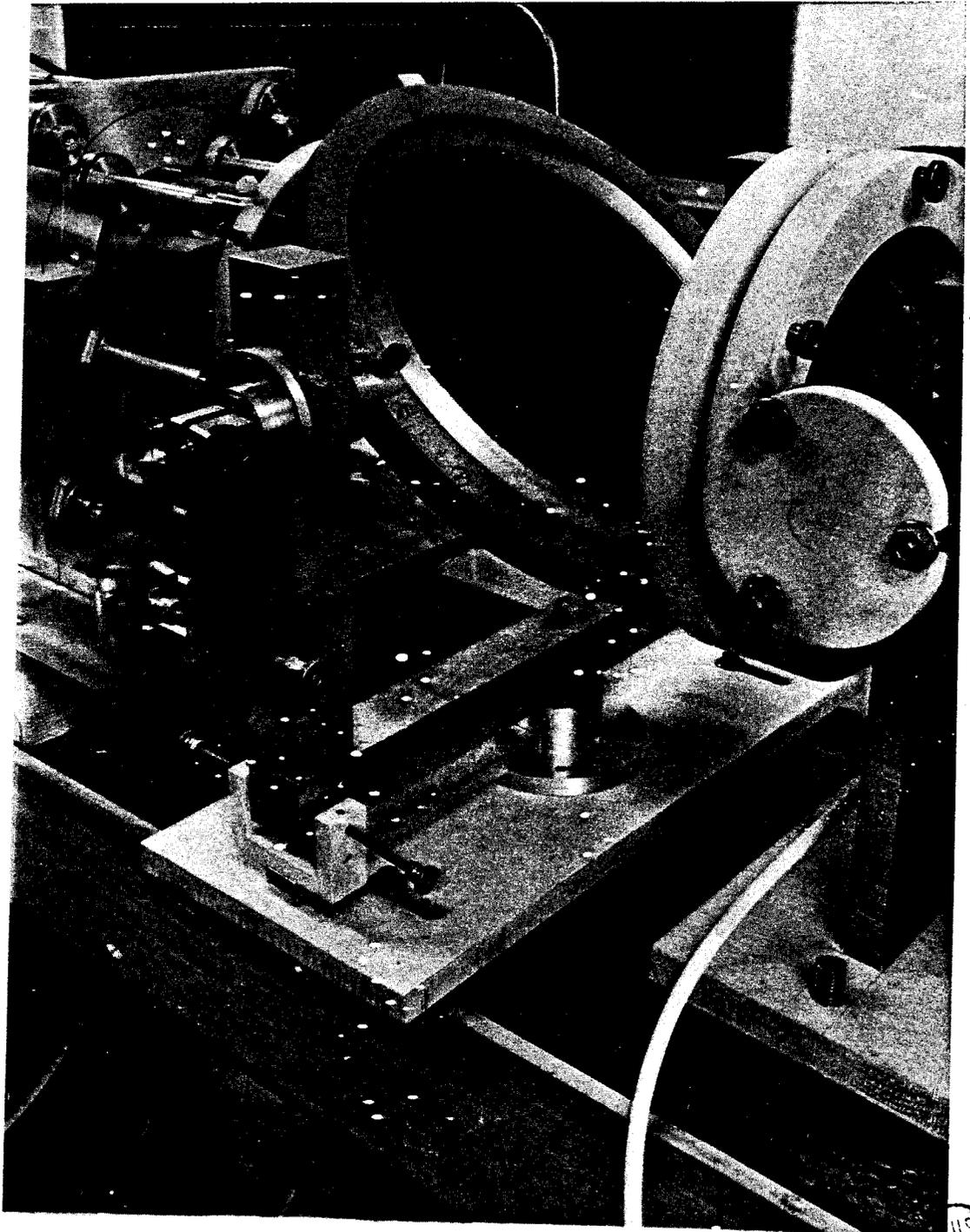


FIGURE 23 : Partie "réception" du spectromètre.





UIS
LILLE

FIGURE 24 : Support de grille et grille.

II.2.4. Support de grille.

Le support de grille, présenté figure 24, a été réalisé en duralinox. La monture de la grille existant déjà, nous avons réalisé l'étrier de support et le pivot central. Nous disposons de ce fait d'un support muni de trois degrés de liberté en rotation permettant d'orienter la grille métallique. De façon à conserver la position de la grille, nous avons fixé l'embase du support sur la poutre de bois.

II.2.5. Cellule d'interaction.

Une cellule de pyrex est indispensable si l'on veut augmenter la durée de vie des espèces instables utilisées. Nous avons donc fait réaliser une cellule de verre de 0.9 m de long et 0.12 m de diamètre intérieur. Cette cellule, présentée figure 25, est équipée de flasques

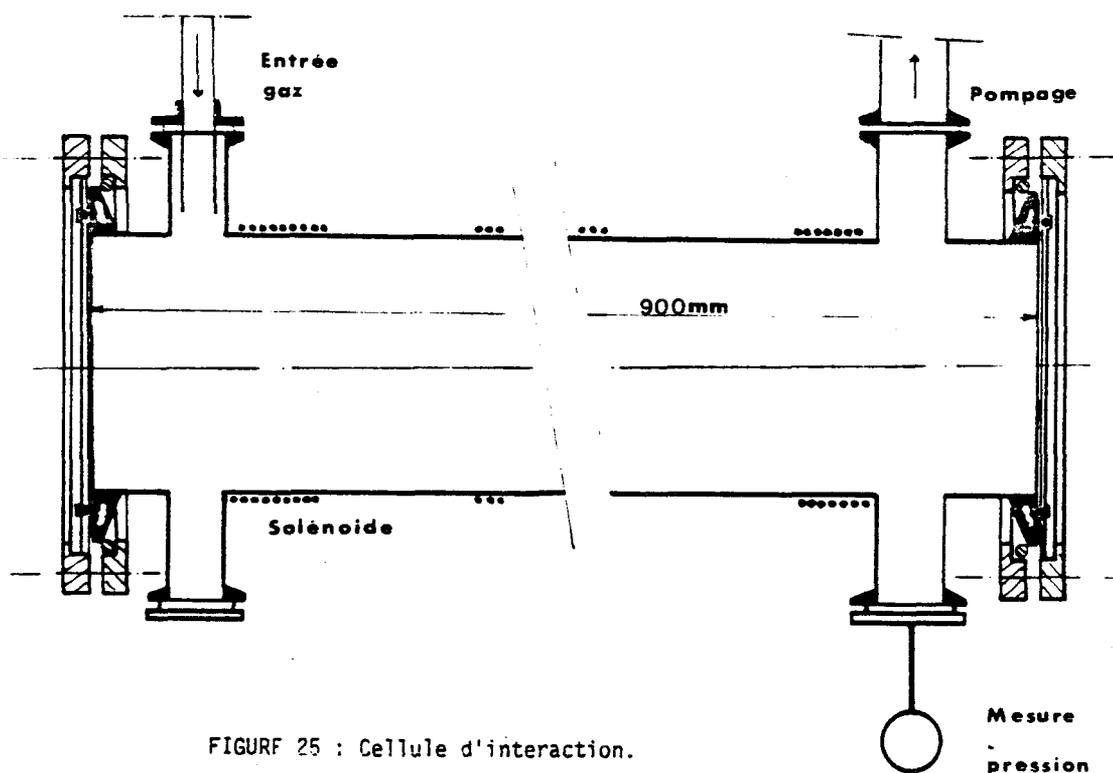


FIGURE 25 : Cellule d'interaction.

de Téflon à "monture rapide". L'épaisseur de ces flasques est de 20 mm. La cellule possède quatre ouvertures placées en bout et permettent l'introduction des gaz, la mesure de pression et le pompage. Elle repose sur un berceau de hauteur réglable fixé sur la poutre.

Autour de la cellule est enroulé un solénoïde constitué de fil de cuivre isolé, de diamètre 4 mm. Le solénoïde de diamètre moyen 0.14 m comporte 176 spires et occupe la quasi totalité de la longueur de la cellule. Le coefficient d'auto inductance de ce solénoïde est de $0.7 \cdot 10^{-3}$ Henry, sa résistance de 0.3Ω . Le champ magnétique obtenu est de 3.07 Gauss/Ampère.

Pour minimiser l'influence du champ magnétique terrestre et l'influence des champs magnétiques externes, nous avons orienté le dispositif expérimental orthogonalement au champ terrestre et utilisé un blindage magnétique. Ce blindage est constitué d'un cylindre de "mu-métal" enveloppant la quasi-totalité de la cellule. Le coefficient théorique de protection de ce blindage est de 90.

De cette façon, nous pouvons considérer que l'élargissement résiduel des transitions dû à la présence d'un champ magnétique résiduel est négligeable devant l'élargissement homogène ou Doppler.

II.2.6. Miroirs isotropes et anisotropes.

Les miroirs isotropes ont été réalisés en duralinox, au tour programmable (I.C.A.M. Lille). Ils possèdent une courbure sphérique de rayon 2 m ; ils sont circulaires, de diamètre 0.20 m. Le couplage est réalisé par l'intermédiaire d'un guide d'onde affleurant la face concave du miroir, en son centre. Nous avons utilisé pour cela un guide d'onde conventionnel, dans la gamme 50-75 GHz.

Le miroir anisotrope, ou grille, a été réalisé à partir d'un support de circuit imprimé d'électronique (SANELEC). Les caractéristiques de cette grille sont les suivantes :

- Support : verre époxy, $\epsilon_r \sim 5.5$; nature du "fil" : cuivre ;
"épaisseur" du fil : 0,3 mm ; nombre de "fils" au millimètre : 2 ;
dimensions : 0.20 m \times 0.30 m.

Cette grille est caractérisée par un coefficient de réflexion théorique, en puissance, de 0.96 à 60 GHz, en incidence normale {20}. Le miroir anisotrope est fixé par ventouses en bout des barres cylindriques qui équipent la cage d'écureuil du côté réception.

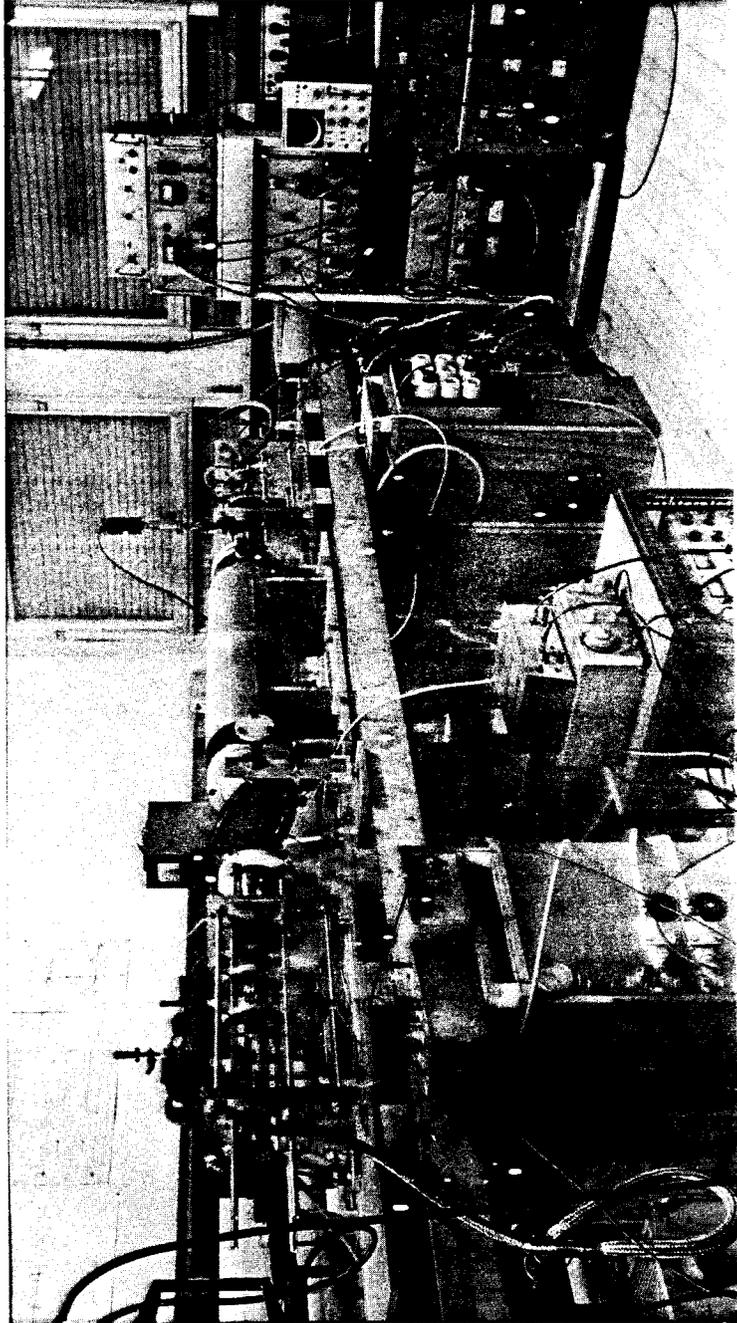


FIGURE 26 : Vue d'ensemble du spectromètre.

II.2.7. Montage du spectromètre.

Le montage du spectromètre à onde progressive a été réalisé à partir des différents éléments réalisés. L'alignement des parties émettrices et réceptrices a été effectué au Laser Hélium-Néon, des réticules en fil étant installés préalablement sur les composants.

Sur la figure 26, on peut observer une vue d'ensemble du spectromètre ainsi que l'infrastructure associée.

Le montage de l'interféromètre n'a pas encore été effectué ; il nécessite le démontage du spectromètre sur lequel nous travaillons actuellement.

II.3. Dispositifs annexes du spectromètre.

II.3.1. Production des radicaux.

La production des radicaux libres est assurée par l'intermédiaire d'un générateur Radio-Fréquence (R.F.) fonctionnant à une fréquence voisine de 2.45 GHz et de puissance 200 W (E.F.I. - M.O.). Le rendement de ce type de production peut être estimé à 10 % maximum du nombre de molécules introduites dans la cavité {13}. Une augmentation de rendement nécessite l'utilisation d'une décharge R.F. ou d'une décharge continue dans la cellule d'interaction {13}. Ce dernier mode de production est envisagé mais non réalisé.

II.3.2. Génération du champ magnétique.

Le courant requis pour l'alimentation du solénoïde est fourni par un amplificateur basse fréquence de puissance excité par un générateur de tension triangulaire (C.R.C., G.B.860) assurant un balayage linéaire du champ (figure 27). Quelques expériences ont également été réalisées en balayage sinusoïdal. La

fréquence de balayage est couramment de 125 Hz ; elle se situe bien au delà des fréquences d'oscillations mécaniques et elle est suffisamment basse pour permettre l'emploi de moyennes numériques classiques pour le traitement de signal.

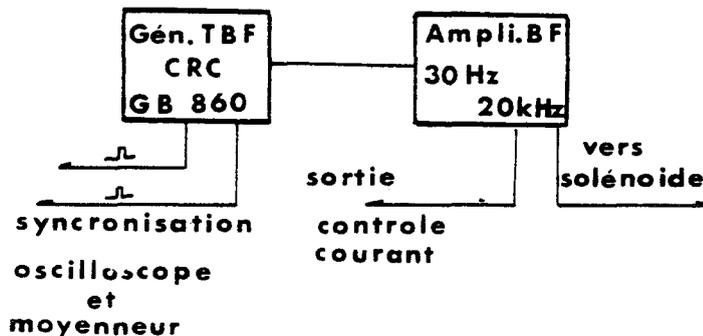


FIGURE 27 : Dispositif générant le champ magnétique.

Pour éviter une déformation du signal de balayage, une résistance de $3,3 \Omega$ a été placée en série avec l'enroulement de manière à assurer la constante de temps $\frac{L}{R}$ à une valeur de l'ordre de 0.2 ms , c'est-à-dire bien en deça de la période du signal. La puissance de crête délivrée par l'amplificateur, pour un champ de 7 Gauss, est avec les données précédentes, de 20 Watts. Le générateur de triangle fourni des impulsions réglables utilisées pour le déclenchement du moyenneur numérique et de l'oscilloscope.

Dans certaines expériences, il est nécessaire d'ajouter un courant continu au courant triangulaire, notamment pour observer une composante Zeeman déterminée et l'isoler des autres composantes, ceci a été obtenu par une modification du circuit d'entrée de l'amplificateur représenté figure 28.

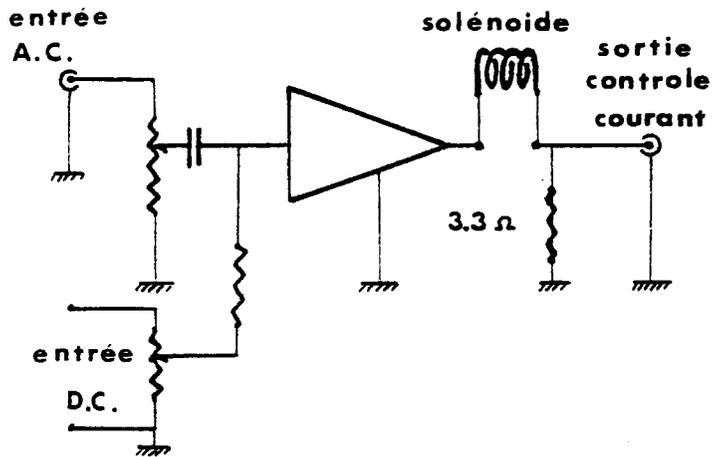


FIGURE 28 : Dispositif modifié pour la génération du champ magnétique.

La mise en oeuvre d'un tel dispositif est simple. Pour les fréquences de balayage utilisées, nous pouvons considérer comme négligeables les déformations du signal en sortie de l'amplificateur. Ceci est d'ailleurs constaté par l'intermédiaire de la sortie de contrôle.

Dans le cas d'un décalage important du point milieu du balayage, nous disposons d'un autre

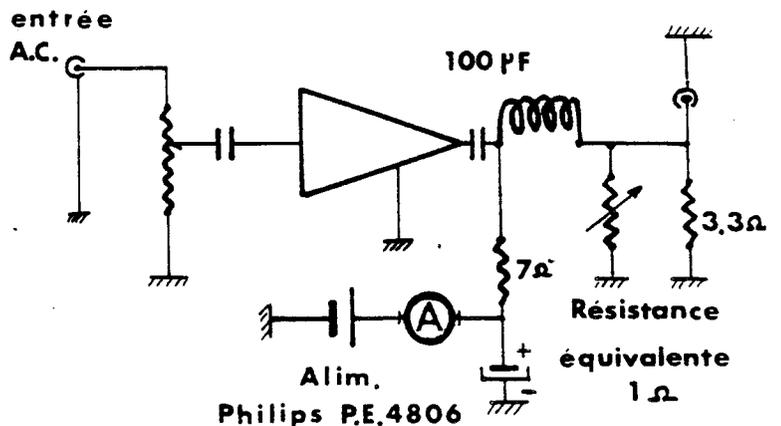


FIGURE 29 : Dispositif permettant le déplacement du "point central" de balayage du champ.

montage, présenté figure 29, dans lequel le champ magnétique "continu" est obtenu à l'aide d'un générateur auxiliaire. Par ce procédé, il nous est possible de déplacer le point milieu du balayage de quelques dizaines de Gauss.

II.3.3. Détection superhétérodyne.

Nous avons utilisé successivement plusieurs types de détections superhétérodynes avec des fréquences intermédiaires (F.I.) de 30 MHz. La version actuelle du spectromètre utilise une chaîne de détection de F.I. voisine de 520 MHz présentant une figure de bruit plus favorable. C'est cette chaîne de détection que nous présentons figure 30.

Le F.I. portant le signal est issu d'un mélangeur, en l'occurrence une diode Schottky (Hughes) ou Varian (selon la fréquence de source). Une première amplification du signal issu du mélangeur est assurée par un préamplificateur de bas bruit (S.C.D., fréquence centrale 520 MHz, bande ± 25 MHz à 3 dB, gain : $G = 40$ dB, figure ou bruit : $F = 2.1$ dB). Une seconde amplification est effectuée par un "Tuner Télé" (R.T.C. U.F.1. et platine F.I. Philips) de gain réglable (47 à 110 dB), qui assure également la transcription basse fréquence et la détection du signal).

Une nouvelle amplification et un filtrage du signal basse fréquence sont assurés par un amplificateur passe-bande de gain et bande passante réglable. Le filtrage est effectué avant amplification, le gain est réglable de 0 à 46 dB.

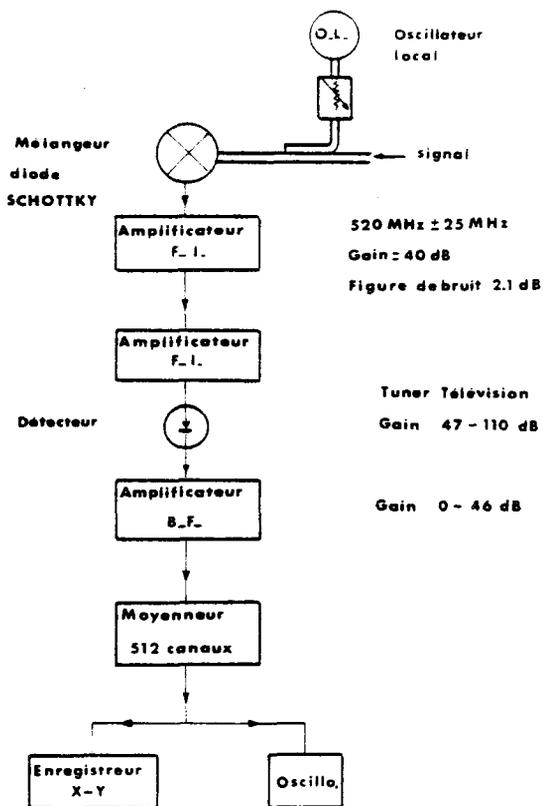


FIGURE 30 : Chaîne de traitement du signal.

La stabilisation de l'oscillateur local ne s'avère pas indispensable dans la mesure où l'on utilise un oscillateur de dérive lente. Cependant, lorsque nous avons été amené à le stabiliser, nous avons utilisé la même chaîne de stabilisation que pour le Klystron source.

Le procédé, présenté figure 31 (partie gauche), est le suivant :

- l'harmonique de la fréquence du carcinotron utilisé pour stabiliser la source est mélangé avec le signal issu de l'oscillateur local dans un mélangeur conventionnel. La F.I. issue de ce mélange est envoyée sur un "Tuner Télé" qui assure la transcription de ce battement à 30 MHz. Le signal issu du Tuner est envoyé sur un synchrinateur Schomandl (F.D.S. 30) qui assure le bouclage de l'oscillateur local.

Cette dernière possibilité nous permet de placer le battement dans une zone où le gain de la chaîne de détection est stationnaire en fonction de la fréquence et de diminuer de ce fait le bruit dû à la discrimination des bruits de phase des oscillateurs.

CHAPITRE III

PERFORMANCES DU SPECTROMETRE

ET APPLICATIONS

III. PERFORMANCES DU SPECTROMÈTRE ET APPLICATIONS.

III.1. Caractéristiques hyperfréquences.

Les performances du spectromètre sont principalement conditionnées par sa perte d'insertion et son taux maximum de réjection de la polarisation incidente (facteur d'extinction ϵ). Ces caractéristiques semblent uniformes dans la gamme 50-75 GHz pour laquelle le spectromètre a été plus particulièrement conçu.

Notons que nous avons également utilisé le spectromètre dans la gamme 90-140 GHz sans constater une réduction sensible de ses performances.

III.1.1. *Pertes d'insertion du spectromètre.*

Nos expériences sont effectuées en ondes progressives et les pertes de transmission se traduisent, en spectroscopie linéaire, par une diminution de sensibilité du spectromètre. Par ailleurs, en propagation quasi-optique, les densités de puissance sont notablement inférieures à celles obtenues dans un guide d'onde et toute diminution de celle-ci rend notre dispositif impropre à des expériences de spectroscopie non linéaire.

Nous avons mesuré la perte d'insertion du spectromètre dans la position polariseur et analyseur parallèles. Pour cela, nous avons utilisé une thermistance (Hitachi, Mod. E.2502) couplée à un pont de mesure Philips (P.P.4460).

La mesure a été effectuée en relevant la puissance absorbée par la thermistance en deux points A et B du montage présenté figure 32. Ceci a conduit à une perte d'insertion de 6 dB dont 1 dB pour la grille, et 1 dB par atténuateur. Cette perte d'insertion dépend assez peu de la distance entre cornets émetteur et récepteur (variation de l'ordre de 0,5 dB).

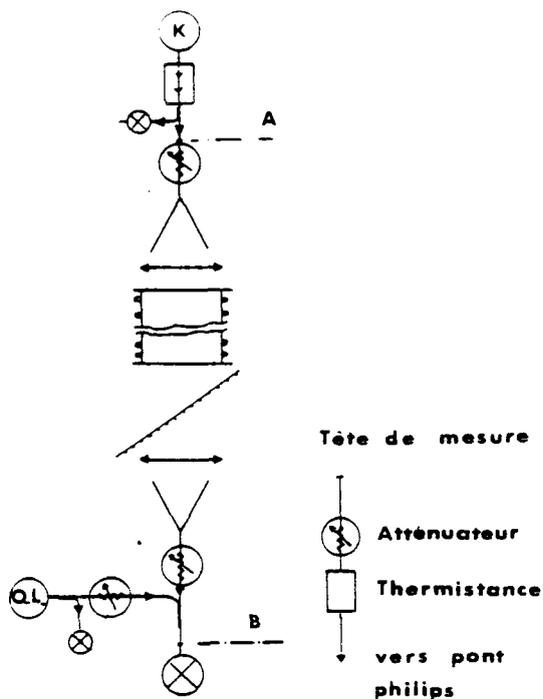


FIGURE 32 : Dispositif de mesure des pertes d'insertion.

III.1.2. Facteur d'extinction. ϵ .

Ce facteur d'extinction peut être mesuré par deux méthodes différentes que nous présentons successivement.

III.1.2.a. Méthode directe.

La mesure s'effectue en deux temps, en utilisant la détection super-hétérodyne.

- en un premier temps, nous mesurons le niveau détecté correspondant à l'extinction optimum.
- en un deuxième temps, nous déterminons l'atténuation nécessaire pour obtenir le même niveau détecté lorsque le spectromètre est réglé en position polariseur et analyseur parallèles.



Pour effectuer cette mesure, un atténuateur calibré de 50 dB (Hitachi mod. M.1513) a été introduit dans le montage au niveau du coupleur de stabilisation de la source (point A de la figure 32). Une mesure effectuée à 56 GHz conduit à un facteur d'extinction ϵ de -93 dB *

II.1.2.b.

La seconde méthode est basée sur la mesure de l'augmentation relative du champ détecté lorsque l'on effectue une rotation d'un angle connu du polariseur par rapport à sa position correspondant à l'extinction optimum.

Le champ complexe, après l'analyseur correspondant à l'extinction maximum, peut s'écrire sous la forme $|\mathcal{E}_{a\min}''| = \sqrt{\epsilon} |\mathcal{E}(\lambda)|$ où $\mathcal{E}(\lambda)$ est la valeur qu'aurait, au même point, le champ incident s'il n'était pas perturbé et ϵ le facteur d'extinction. Il lui correspond une tension détectée égale à V_0 . Cette tension est amenée à la valeur V ($V \gg V_0$) par une légère rotation du polariseur d'un angle $\Delta\theta$. Le champ détecté a pour expression approchée : $\mathcal{E}_A'' \simeq \Delta\theta \mathcal{E}(\lambda)$.

Le rapport $K = \frac{|\mathcal{E}_{a\min}''|}{|\mathcal{E}_A''|} = \frac{\sqrt{\epsilon}}{\Delta\theta}$ est mesuré à l'aide d'un atténuateur en ramenant la tension détectée à la valeur minimum (V_0). Le facteur d'extinction est donné par la relation :

$$\sqrt{\epsilon} = K \Delta\theta$$

La mesure de $\Delta\theta$ (de l'ordre de 10^{-3} rd, c'est-à-dire 3' environ) s'effectue à l'aide de la vis micrométrique équipant la tête émettrice (cf. II.2.2.).

Cette méthode conduit toujours à 56 GHz, à un facteur d'extinction de -96 dB.

L'écart de 3 dB entre les deux valeurs mesurées est en grande partie due au faible rapport signal sur bruit obtenu lors de la mesure de la tension minimale détectée (V_0).

Une mesure effectuée à 118 GHz et utilisant la seconde méthode donne un facteur d'extinction d'au moins -78 dB.

* (Bien entendu, lorsque l'on en arrive à détecter des signaux de niveau aussi bas en dessous du signal de source, les moindres fuites même par les chemins les plus inattendus doivent être évitées. En particulier, nous avons été amené à disposer des manchons de cuivre (épaisseur 0,5 mm) entre cornets et lentilles et à blinder soigneusement, avec du feuillard d'aluminium ("papier chocolat"), toutes les brides de raccordement entre composants du guide de têtes émettrices et réceptrices).

Nous avons vu, au chapitre premier, que l'extinction optimum peut être décrite en terme d'interférence entre deux champs, l'un dû aux imperfections du système analyseur-polariseur croisés (\mathcal{E}_1), l'autre lié à l'existence d'ondes réfléchies soit par les parois de la cellule d'interaction (\mathcal{E}_2) soit par des obstacles extérieurs (\mathcal{E}_3) ; ces différents champs ont été introduits dans la description théorique du § I.2.2. (voir également figure 7).

Il convient d'estimer l'ordre de grandeur du champ \mathcal{E}_1 d'une part, et de $|\mathcal{E}_2 + \mathcal{E}_3|$ d'autre part.

Lorsque l'extinction est maximum, l'interférence se fait de façon destructive ; l'équation de définition du facteur d'extinction peut s'écrire :

$$|\mathcal{E}_1| - |\mathcal{E}_2 + \mathcal{E}_3| = \sqrt{\epsilon} |\mathcal{E}(\lambda)|$$

Par déplacement de la tête émettrice, il est possible de faire varier la phase relative des deux champs et de la faire interférer de façon constructive ; on a alors :

$$|\mathcal{E}_1| + |\mathcal{E}_2 + \mathcal{E}_3| = |\eta| \cdot |\mathcal{E}(\lambda)|$$

Une mesure effectuée à 56 GHz, en utilisant la méthode directe, conduit à des valeurs de $\sqrt{\epsilon}$ et $|\eta|$ respectivement égales à -93 dB et -43 dB.

Etant donné que $\sqrt{\epsilon} \ll \eta$, les amplitudes des deux champs interférant sont sensiblement égales, soit :

$$\left| \frac{\mathcal{E}_1}{\mathcal{E}(\lambda)} \right| \simeq \left| \frac{\mathcal{E}_2 + \mathcal{E}_3}{\mathcal{E}(\lambda)} \right| \simeq 3.5 \cdot 10^{-3}$$

c'est-à-dire -49 dB.

III.2. Caractéristiques du balayage de champ magnétique.

Le balayage de champ magnétique est effectué à l'aide d'un solénoïde enroulé autour de la cellule d'interaction et alimenté par un générateur de courant (voir II.3.2.).

L'étalonnage du balayage a été réalisé en effectuant un enregistrement du signal de dichroïsme circulaire de la raie J,N : 0,1 → 1,1 de O₂ à 118 GHz {24}.

On se place à une fréquence de source supérieure de 3 MHz à la fréquence de raie en champ nul. On superpose, dans le solénoïde, un courant continu et un courant triangulaire à l'aide du montage décrit en II.3.2. (figure 29). On repère, sur l'oscilloscope, le point correspondant au passage à zéro du courant triangulaire de balayage et on ajuste le courant continu pour amener en ce point le sommet de la courbe de dichroïsme associé à la composante σ⁺. Le courant continu correspondant est alors mesuré à l'ampèremètre (cf. figure 29).

En partant de la valeur calculée du déplacement Zeeman {24}

$$\Delta\nu_{\text{MHz}} = \pm 1.4011 B + 7.845 \cdot 10^{-5} \cdot B^2 \quad (B \text{ en Gauss}),$$

nous obtenons :

$$\frac{B}{I} \simeq 3,14 \text{ Gauss/Ampère}$$

Cette valeur diffère peu de celle calculée § II.2.5. (3,07 Gauss/Ampère).

Pour évaluer l'homogénéité du champ magnétique, nous avons effectué l'enregistrement du signal de dichroïsme circulaire associé à la transition de rotation J,N : 1,1 → 2,1 de O₂ à 56.24 GHz. Sur cet enregistrement, présenté figure 33, les trois composantes, du même type σ⁺, sont partiellement résolues. En supposant que les composantes soient à la limite de résolution et en admettant une composition quadratique des élargissements, il est possible d'évaluer l'inhomogénéité du champ magnétique. Nous l'estimons de 1 %.

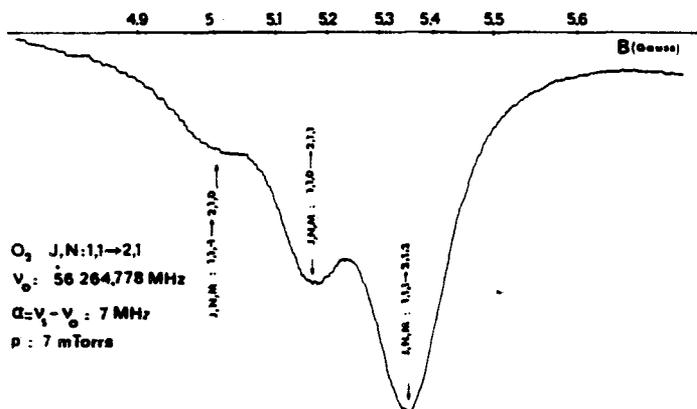


FIGURE 33 : Essai de séparation de composantes d'une des formes d'absorption de la J,N 1,1 → 2,1 de O₂

III.3. FORME DES SIGNAUX OBTENUS.

Nous avons calculé théoriquement, en I.2., la forme des signaux de biréfringence et de dichroïsme circulaire en supposant le milieu optiquement fin et en l'absence de phénomènes de saturation. Cette dernière condition est parfaitement satisfaite dans le cas de la molécule d'oxygène où le couplage molécule-champ se fait par dipole magnétique. Aussi, avons-nous choisi cette molécule et la transition, particulièrement simple, $J,N : 0,1 \rightarrow 1,1$ à 118.75 GHz pour confirmer nos analyses.

Les enregistrements de la figure 34 ont été obtenus pour une fréquence de source supérieure de 3 MHz à la fréquence de la transition en champ magnétique nul. Par ajustement de la longueur du spectromètre et de l'angle entre polariseur et analyseur, au voisinage de l'extinction, nous mettons clairement en évidence des signaux, soit de dichroïsme pur (en bas), soit de biréfringence pure (en haut). Nous vérifions bien entendu la forme impaire de ces signaux par rapport au zéro du champ magnétique.

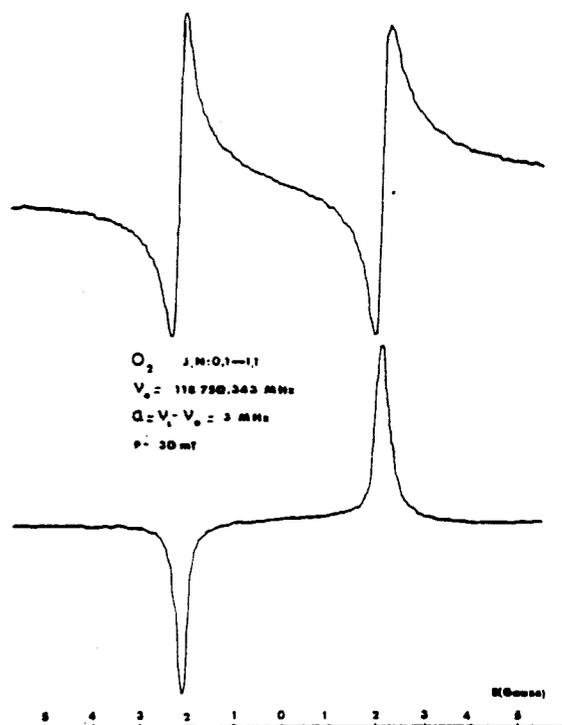


FIGURE 34 : Signal de biréfringence et absorption continue sur O_2
 $J,N : 0,1 \rightarrow 1,1$

III.4. SENSIBILITE DU SPECTROMETRE.

Afin d'évaluer la sensibilité de notre spectromètre, nous avons envisagé l'étude d'une raie faible, à savoir la transition de rotation $J,N : 6,7 \rightarrow 7,7$ de O_2 dans le premier état vibrationnel excité à 59265,3 MHz [25]. Le coefficient d'absorption, dans l'état excité, est de l'ordre de $9 \cdot 10^{-9} \text{ cm}^{-1}$, il y correspond dans notre cas une épaisseur optique de $8 \cdot 10^{-7}$.

L'enregistrement du signal de biréfringence associé est présenté figure 35 *. Il a été obtenu après 9 minutes d'accumulation. Le rapport signal/bruit est ici de l'ordre de 10.

O₂ J,N : 6,7-7,7
 premier état vibrationnel excité
 de l'état $^3\Sigma_g$
 $\nu_3 = \nu_0 = 59\,265,3$ MHz
 Epaisseur optique - $8 \cdot 10^{-7}$

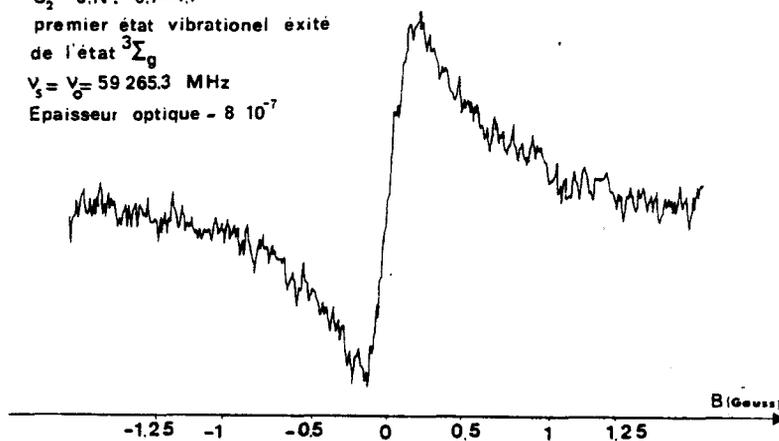


FIGURE 35 : Signal de biréfringence obtenu avec O₂. J,N : 6,7 + 7,7 v=1

Toutes choses égales par ailleurs, nous avons tenté l'observation du signal d'absorption associé à cette même transition en spectrométrie conventionnelle avec

le même appareillage, c'est-à-dire en position analyseur et polariseur parallèles. Pour un même niveau de bruit, il apparaît impossible d'observer le signal d'absorption correspondant. Ceci nous permet d'estimer à 10 le gain en sensibilité apporté par notre spectromètre.

En fixant la valeur limite du rapport signal sur bruit à 1, notre méthode permet de mettre en évidence une raie d'absorption associée à une épaisseur optique de $8 \cdot 10^{-8}$, soit un coefficient d'absorption de $9 \cdot 10^{-10} \text{ cm}^{-1}$.

II.5. MESURE DE L'ÉPAISSEUR OPTIQUE D'UN MILIEU. INTENSITÉ DE TRANSITION.

Cette mesure est basée sur la comparaison entre l'amplitude du signal de biréfringence associé à une transition et la variation de la tension continue détectée provoquée par une rotation du polariseur d'un angle $\Delta\theta$ connu. Si l'ensemble de la détection est linéaire, l'amplitude du signal de biréfringence et la variation de tension continue sont respectivement proportionnelles à l'épaisseur optique du milieu et à $\Delta\theta$; l'épaisseur optique au milieu est alors directement proportionnelle à $\Delta\theta$.

* Notons que l'amplitude crête à crête du signal observé correspond à une rotation du plan de polarisation de $0,7 \pi/2$ (cf. figure 14 du § 1.2.3.), c'est-à-dire de $1/20$ ème de seconde d'arc.

Pratiquement, en partant de la position d'extinction maximum pour laquelle la tension détectée est V_0 , on effectue une rotation du polariseur d'un angle $\Delta\theta$ de façon à amener la tension détectée à la valeur V ($V \gg V_0$) pour laquelle l'ensemble de la détection est linéaire.

En l'absence de gaz, le champ complexe détecté est $\mathcal{E}_a'' \simeq \Delta\theta \mathcal{E}(\lambda)$ et la tension détectée s'écrit $V = G |\mathcal{E}_a''| = G \Delta\theta |\mathcal{E}(\lambda)|$ où G est le gain de l'ensemble de la détection. En présence de gaz, lorsque la fréquence de la source est égale à la fréquence de la transition, l'expression du champ détecté s'écrit simplement :

$$\mathcal{E}_a'' = \left[\Delta\theta + \frac{\beta\ell}{2} f(O,B) \right] \mathcal{E}(\lambda) \quad \text{où, rappelons le, les termes entre}$$

crochets sont réels, $f(O,B)$ est une fonction impaire du champ magnétique B définissant la forme du signal de biréfringence de la transition. Cette expression suppose que l'on se soit placé dans des conditions compatibles avec le modèle décrit au chapitre I, c'est-à-dire que le milieu est optiquement fin et que l'effet Doppler est négligeable. La tension détectée évolue de $V + \Delta V$ à $V - \Delta V$ où ΔV est défini par la relation :

$$\Delta V = G \frac{\beta\ell}{2} f_M |\mathcal{E}(\lambda)|$$

avec f_M la valeur maximum de la fonction $f(O,B)$. Le taux de modulation m du signal détecté, défini par le rapport $m = \frac{\Delta V}{V}$, est égal à $m = \frac{\beta\ell}{2} \cdot \frac{f_M}{\Delta\theta}$, l'épaisseur optique est alors $\beta\ell = \frac{2m \Delta\theta}{f_M}$.

Notons que le calcul de la fonction $f(O,B)$ nécessite la connaissance de l'effet Zeeman de la transition ainsi que de l'élargissement collisionnel. Etant donnée la faible amplitude du champ magnétique balayé ($\simeq 1$ Gauss) un calcul de l'effet Zeeman à l'ordre le plus bas est suffisant.

Cette méthode de mesure a été appliquée à la transition $J,N : 0,1 \rightarrow 1,1$ de O_2 . Pour cette transition, $f_M = 0,5$. Pour $V = 4$ Volt, on a $\Delta\theta = 7 \cdot 10^{-4} \pm 10^{-4}$ rd et $\Delta V = 2V$. Soit $m = 50\%$. La longueur de la cellule d'interaction étant de $0,9$ m, ces mesures conduisent à un coefficient d'absorption

$$\beta = 1,55 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$$

avec une précision de l'ordre de 15% .

Pour cette transition, les valeurs calculé et mesurée de β sont respectivement $1,6 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$ et $1,5 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^{-1}$ {26}{27}.

III.6. SPECTROSCOPIE SANS EFFET DOPPLER. CROISEMENT DE NIVEAUX STIMULE .

Notre spectromètre était conçu initialement pour travailler dans les conditions usuelles de la spectroscopie microonde où l'élargissement collisionnel des raies d'absorption est prépondérant devant celui lié à l'effet Doppler et aux phénomènes de saturation.

Dans le domaine millimétrique et à pression suffisamment basse l'effet Doppler peut devenir la cause prépondérante d'élargissement des raies d'absorption. Pour fixer des ordres de grandeur, disons que l'élargissement Doppler d'une raie à 100 GHz est cinq fois plus grand que son élargissement collisionnel pour une pression de l'ordre du millitorr (micron de mercure). La sensibilité de notre spectromètre nous permet de travailler à de telles pressions. A ces pressions, dans le cas de molécules polaires, on se trouve facilement en régime d'interaction non linéaire même pour des champs micro-ondes relativement faibles comme ceux qui existent dans notre cellule en raison de sa section droite importante. En reprenant les données précédentes et en considérant un élément de matrice de transition raisonnable de 0.3 Debye, il est facile de montrer que les élargissements par collision et par saturation sont égaux pour une valeur du champ microonde de l'ordre de 13 V/m (paramètre de saturation égal à 1). Compte tenu de la section de la cellule, ce champ est atteint avec notre spectromètre, pour une puissance totale appliquée au gaz de l'ordre de 5 mW, ce qui est facilement réalisable et permet d'envisager des expériences de spectroscopie subDoppler utilisant les techniques d'absorption saturée développées récemment dans le domaine microonde {28}, {29}, {30}, {31}.

Sans modification, notre spectromètre a pu ainsi être utilisé pour des études de croisement de niveaux stimulés dont nous rappelons brièvement le principe dans le cas simple d'un système à trois niveaux interagissant avec les deux polarisation σ^+ et σ^- (figure 36). A l'ordre le plus bas (spectroscopie linéaire), ces interactions sont indépendantes, mais, en régime de champ fort, elles sont évidemment couplées puisque

les deux transitions correspondantes présentent un niveau commun. Lorsque la distance $2\gamma\beta$ entre sous niveaux Zeeman est supérieure à la largeur collisionnelle, les deux polarisations σ^+ et σ^- interagissent avec des molécules de vitesses différentes et dans ce domaine, la susceptibilité du gaz évolue avec B selon une loi fixée par l'effet

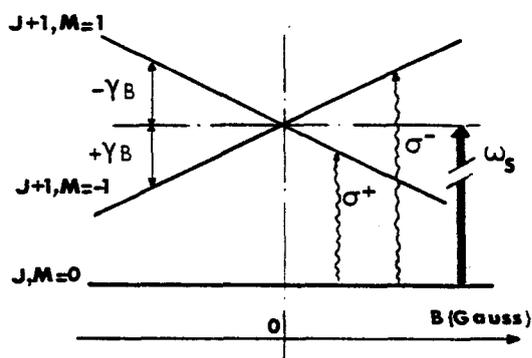


FIGURE 36 : Diagramme de niveaux.
Croisement de niveaux.

Doppler. En revanche, dès que la distance entre composantes Zeeman devient de l'ordre de la largeur collisionnelle, les mêmes molécules interagissent avec les deux polarisations et cet effet conduit à une modification de susceptibilité localisée au voisinage du point de croisement des niveaux $J = 1, M = \pm 1$, c'est-à-dire en champ nul.

En spectroscopie d'absorption, le signal de croisement de niveau apparaît comme un signal fin d'absorption qui se soustrait au profil Doppler de la transition. La largeur de ce signal est égale à la largeur homogène de la transition, son amplitude croît avec la puissance incidente et atteint environ 10 % de l'amplitude de raie {31}, {32}.

L'étude théorique du signal de croisement de niveau, dans le cas de l'absorption, a été effectuée par M.S.FELD *et al* {33}. Un calcul semblable, dans le cas de la dispersion, est actuellement développé par J. LEGRAND et B. MACKÉ {34}. Il conduit, dans le cas d'une étude entre polariseur et analyseur croisés, à l'observation d'un fin signal de dispersion qui vient se soustraire de la forme de dispersion élargie par effet Doppler.

Notre dispositif permet l'observation d'un tel signal. Nous présentons, figure 37, un enregistrement d'un signal de croisement de niveau stimulé en champ nul obtenu sur la transition $J, N : 2, 1 \rightarrow 3, 2$ de SO , à 99299.3 MHz, pour une pression de 1.5 mTorr.

L'amplitude du signal croît avec la puissance incidente (effet non linéaire). La résolution obtenue sur le signal de croisement, de l'ordre de 20 KHz, correspond à la largeur homogène de la transition.

Notons également que la largeur collisionnelle mise en évidence dans cette expérience est caractéristique de la relaxation de cohérence Zeeman qui peut différer de celle de la transition microonde.

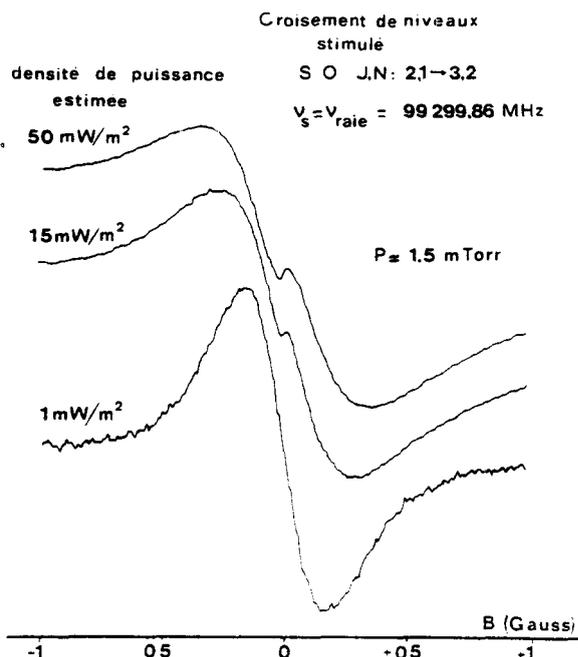


FIGURE 37 : Evolution du signal de croisement de niveau en fonction de la puissance microonde.

III.7. SPECTROSCOPIE EN TEMPS RESOLU.

Jusqu'à présent, nous n'avons étudié que des processus stationnaires qui donnent accès aux processus de relaxation par des mesures de largeur de résonance. L'étude directe de ces processus nécessite l'utilisation des méthodes de spectroscopie en temps résolu. Ces méthodes consistent à observer la réponse transitoire d'un système moléculaire soumis à une brusque variation de ses conditions d'excitation. Les techniques utilisées peuvent être classées en trois catégories :

- Commutation d'absorption par effet STARK et observation de la réponse transitoire du système moléculaire étudié.

le système moléculaire est amené en et hors résonance avec la fréquence de source par le déplacement des niveaux d'énergie sous l'action d'un champ électrique statique.

Cette technique a été développée dans le domaine infrarouge par BREWER et SHOEMAKER (1971) {35} et dans le domaine microonde par B. MACKE et P. GLORIEUX {36}. Elle s'applique aux molécules polaires.

- Commutation de fréquence de source et observation de la réponse du système moléculaire.

La mise en et hors résonance du système moléculaire est effectuée par un déplacement de la fréquence de source en agissant sur les conditions de fonctionnement de celle-ci.

Cette technique, utilisée par T. AMANO et T. SHIMIZU (1973) {37}, présente de graves difficultés liées aux variations de puissance micro-onde qui accompagnent une variation de fréquence.

- Commutation de la puissance de source par tout ou rien et observation de la réponse du système moléculaire.

La mise en et hors résonance du système moléculaire et de la source est ici effectuée en modulant la puissance de source.

Cette technique, introduite par R.H. DICKE et R.H. ROMER (1955) {38}, présente l'inconvénient d'éblouir la détection durant l'éclairement du système moléculaire.

Pour la rendre opérationnelle, il est nécessaire de protéger la détection durant l'établissement du pulse de puissance.

Dans son principe, notre spectromètre semble bien adapté au dernier type d'expérience. En effet, le rayonnement incident ne parvient pas jusqu'à la détection ou du moins, est atténuée d'un facteur important (jusqu'à 93 dB).

Pour juger de la faisabilité d'une telle expérience, nous avons envisagé l'étude de l'absorption transitoire sur une composante d'une transition de rotation.

La source est à une fréquence voisine de celle de la transition sans champ ; nous amenons la composante étudiée en résonance avec la source par application d'un champ magnétique et réglons le spectromètre de façon à observer une forme d'absorption. Par commutation de la puissance de source, par tout ou rien, il nous est possible d'observer, suivant le cas, l'établissement ou la retombée de l'absorption.

Pour effectuer cette expérience, il nous faut :

- choisir une transition moléculaire de structure simple (1)
- réaliser une modulation rapide (< 100 ns) de la puissance hyperfréquence (2).

(1) nous avons choisi, pour cette étude, une transition de rotation d'une molécule stable, en l'occurrence la $J, N : 0, 1 \rightarrow 1, 1$ de O_2 à 118 GHz qui ne présente que deux composantes Zeeman. Notons que l'interaction est ici du type dipolaire magnétique et que cette transition est difficilement saturable. Nous pouvons donc observer les signaux transitoires associés à la relaxation de cohérence optique, en régime linéaire.

(2) le signal de source est fourni par un générateur d'harmonique (Custom Microwave MU 98-38) excité par un Klystron Varian à 59 GHz. L'efficacité d'un tel multiplicateur de fréquence dépendant fortement de son courant de polarisation, nous avons réalisé la modulation du signal de source de la façon suivante : le cristal multiplicateur est alimenté en courant carré par un générateur classique (I.E.C. F.41) en série avec une résistance de 1 K Ω . Pour obtenir un taux de modulation optimum, il est nécessaire de pouvoir régler les courants correspondants aux paliers haut et bas du carré, ce que permet le générateur utilisé. Le temps de montée et descente du pulse hyperfréquence obtenu par cette technique est voisin de 40 ns, ce qui correspond au temps de commutation du générateur ; le taux de modulation de puissance est estimé à 90 %.

Nous observons donc un signal transitoire associé à la différence des absorptions pour ces deux niveaux de puissance. En régime linéaire, ce signal est identique à celui qui serait obtenu pour une modulation de 100 %, il est composé d'un résidu du carré de modulation et du signal transitoire dont l'amplitude peut être de 20 % du résidu du carré. Il est nécessaire, pour observer la réponse du système moléculaire, de séparer ces deux contributions.

Les signaux transitoires sont observés à l'aide d'un analyseur moyenneur, numérique, multicanaux (A.T.N.E.) ; cet appareil comporte 256 canaux, sa résolution ultime est de 10 ns par canal, soit une fréquence d'échantillonnage de 100 MHz. Pour séparer le signal transitoire du résidu du carré on effectue la différence entre les signaux obtenus, après n cycles d'accumulation, lorsque le système moléculaire est res-

pectivement en, puis hors résonance. Pour cela, on utilise les possibilités propres de l'analyseur ; les deux signaux sont stockés successivement dans des mémoires différentes et on effectue ensuite la différence.

L'instabilité du montage rend délicate l'utilisation de cette méthode ; en effet, le niveau du carré résiduel évolue lentement au cours du temps, ce qui interdit des accumulations de longue durée. Nous avons donc envisagé et réalisé un dispositif permettant d'effectuer des différences à des intervalles de temps inférieurs à la seconde. Ces différences se font de façon cyclique, tous les 256, 512, 1024 passages, on effectue simultanément une inversion du signe des échantillons et une commutation de champ magnétique statique. L'inversion de signe se fait, de façon numérique, lors du transfert des échantillons de la tête de prise de données à l'unité centrale de calcul.

Nous présentons, figure 38, les signaux transitoires obtenus pour deux valeurs de la pression d'oxygène (55 et 100 mTorr) avec une durée totale d'accumulation de 4 minutes. Les temps caractéristiques des quasi exponentielles obtenus sont respectivement de 0.8 μ s et 0.44 μ s.

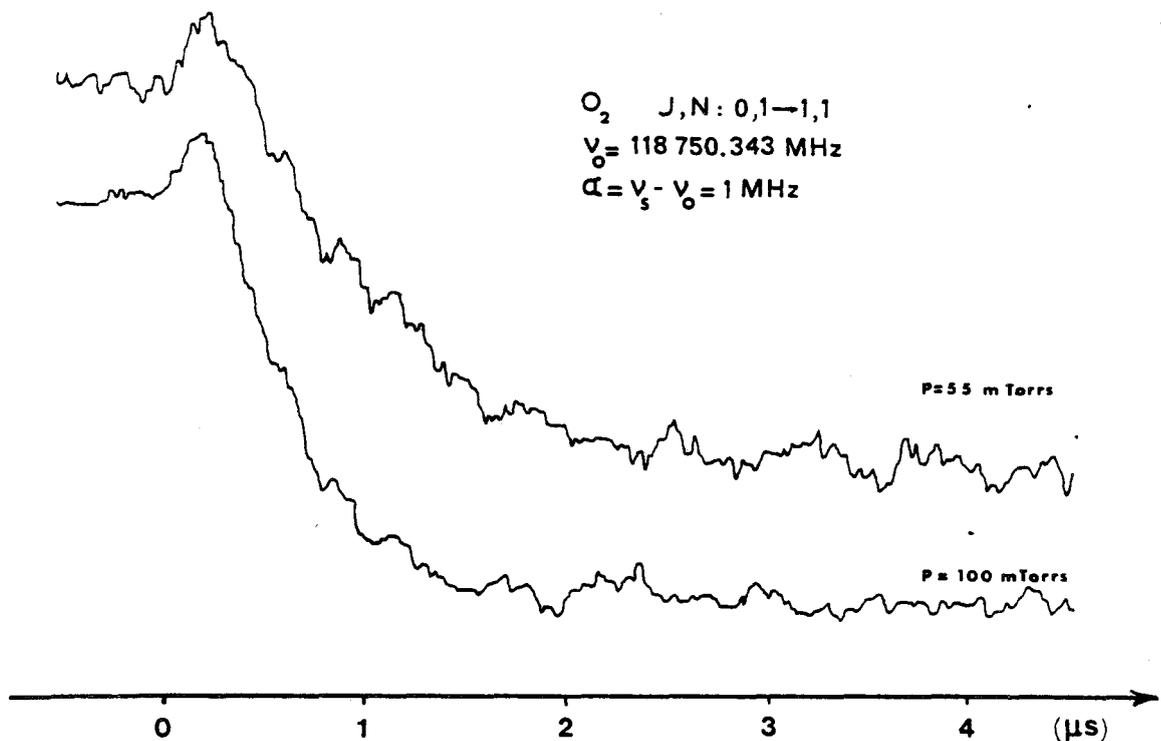


FIGURE 38 : Etablissement de l'absorption

L'effet de relaxation collisionnel est donc clairement mis en évidence mais les temps obtenus sont plus courts que ceux qui résultent des mesures de largeur de raie à haute pression {24} (1.45 et 0.79 μ s). On peut attribuer cette différence à l'effet Doppler. Rappelons que, lorsque celui-ci est dominant, il est responsable d'une évolution des signaux transitoires en erf ($k v_0 t / 2$) {39}, soit à un temps caractéristique τ_D de 1.3 μ s. Nous nous trouvons dans un cas intermédiaire où ce temps est du même ordre de grandeur que celui caractérisant les collisions. Une étude théorique de ce cas est en cours.

D'un point de vue expérimental, il a été nécessaire pour obtenir les enregistrements présentés, de s'écarter sensiblement du réglage du spectromètre conduisant au coefficient d'extinction. En effet, au voisinage de ce réglage, notre spectromètre est trop sélectif en fréquence ; les signaux transitoires obtenus traduisent cette sélectivité et non pas le phénomène physique étudié. D'un autre côté, en s'écarter de l'extinction optimum, on avantage le signal support par rapport à la réponse transitoire du gaz. En raison de l'imprécision du déclenchement du moyenneur (au mieux 1 canal, soit 10 ns), l'élimination du signal support n'est pas parfaite et ceci est responsable du dépassement observé au voisinage de l'instant $t=0$.

CONCLUSION

Le spectromètre présenté dans ce travail est, à notre connaissance, le premier exploitant un changement de polarisation résonant dans un gaz à basse pression et fonctionnant dans le domaine microonde.

Il nous a permis de mettre clairement en évidence, en les séparant complètement, des signaux de dichroïsme et de biréfringence circulaires. Dans le cas de transitions fortement dégénérées, nous avons montré que les contributions des différentes composantes Zeeman au signal de biréfringence étaient pratiquement cumulatives à la résonance et que le signal correspondant était utilisable pour une mesure précise de la fréquence des transitions de faible intensité.

Le spectromètre que nous avons réalisé est caractérisé par une grande versatilité qui a permis son utilisation dans des expériences de spectroscopie non linéaire sub-Doppler (croisement de niveaux stimulé). De plus, par sa conception même, il est bien adapté à des expériences de spectroscopie résolue dans le temps. L'observation du signal physique sur un fond "quasi-noir" permet d'éviter l'éblouissement de la détection par les impulsions microondes. La faisabilité de telles expériences a été montrée.

La sensibilité de notre spectromètre est actuellement limitée par les performances du mélangeur commercial utilisé qui ne nous permet pas le gain en sensibilité escompté résultant de l'utilisation d'une détection superhétérodyne sur fond noir. Cependant, le principe même de cette détection la rend peu affectée par les fluctuations de puissance de source à la différence des procédés de détection classiques très sensibles à de telles fluctuations. A défaut de mélangeurs plus performants (tels ceux utilisés en radioastronomie), nous nous proposons d'augmenter la sensibilité en utilisant une structure résonante isotrope ou anisotrope (grille). Le montage de telles structures est en cours. Enfin, pour des utilisations sur des radicaux plus "exotiques", nous prévoyons la réalisation de décharges R.F. ou continue à l'intérieur de la cellule, car ces méthodes sont les seules qui conduisent à des taux de production satisfaisant de ces radicaux.

BIBLIOGRAPHIE

- 1 C. WIEMAN et T.W. HANSCH
Phys. Rev. Lett. 36, 20, 1170, (1976).
- 2 V. STERT et R. FISHER
Appl. Phys. 17, 151, (1978).
- 3 P.F. LIAO et G.C. BJORKLUND
Phys. Rev. Lett. 36, 11, 584, (1976)
- 4 G. BRUHAT,
Optique, Coll. Masson, § 326 - 332 - 330, Paris, (1965)
- 5 R. SERBER
Phys. Rev. 41, 486, (1932).
- 6 I. TOBIAS et N.L. BALAZS,
Chem. Phys. 32, 93, (1978).
- 7 H.H. RITZE, V. STERT et E. MEIZEL,
Opt. Com. 29, 1, 51, (1979).
- 8 R. STEPHENS,
Can. J. Phys. 24, 1, (1979).
- 9 G.H. TOWNES et A.L. SCHALLOW,
Microwave Spectroscopy - Dover Public. New York, p.288 (1975).
10. R.G. JONES,
J. Opt. Soc. Am. 46, 126, (1956).
- 11 C. WIENAN ,
Thesis, Stanford University, (1977).
- 12 M.A. HEALD, C.B. WHARTON,
Plasma diagnostics with microwaves,
WILEY & SON Edit, N.Y. USA, 224, (1965).
- 13 R.C. WOODS,
Rev. Sci. Instr., 44, 3, 282, (1973).

- 14 F. SCHOCH, L. PROST et H.H. GUNTARD,
J. Phys. E - Sc. Inst. 8, 563, (1975).
- 15 G. SCHAEERER, D. MEIER et E. SCHANDA,
J. Phys. E. Sc. Inst. 8, 561, (1975).
- 16 G. FEHER,
Bell system Tech. J., 449, (mars 1977).
- 17 R. ROSENBERG et C.B. RUBINSTEIN,
App. Opt. 3, 9, 1079, (1974).
- 18 J.J. CLAIR,
Opt. Acta, 18, 1, 47, (1977).
- 19 C.G. MONTGOMERY,
Tech. mes. microondes, Edit. CHIRON, 303, 304, Tome 1.
- 20 T. LARSEN,
I.R.E. - M.I.T. 10, 3, 191, (1962).
- 21 A. LEFLOCH et G. STEPHAN,
Res. Phys. appl. 10, 1, (1975).
- 22 M.A. HEALD, C.B. WHARTON,
Plasma diagnostics with microwaves,
WILEY & SON Edit, N.Y. USA, 330, (1965).
- 23 C.C. COSTAIN,
Can. J. Phys. 47, 2471, (1969).
- 24 B.J. SETZER et H.M. PICKETT,
J. Chem. Phys. 67, 1, 1, (1977).
- 25 T. AMANO et E. HIROTA,
J. Mol. Spect. 53, 346, (1974).
- 26 W.F. KOLBE, H. BIRCHER et B. LEICOVAR,
J. Quant. Spect. Rad. Tr. 18, 1, 47, (1977).

- 27 P.F. WACKER, MASATAKA MIZUSHIMA, J.D. PETERSON et J.R. BALLARD,
Microwave Spectral Tables of diatomic Molecular,
Livre du N.B.S. Monograph 70, Vol. 1, page 57, (1964).
- 28 C.C. COSTAIN,
Can. J. Phys. 47, 2431, (1969).
- 29 R.C. WINTON et W. GORDY,
Phys. Lett. 32, 1, 219, (1970).
- 30 T. SHIMIZU,
Laser Spectroscopy, Ed. Plenum. N.Y. USA, p.433-36 (1974).
- 31 P. GLORIEUX, J. LEGRAND, B. MACKE et B. SEGARD,
Phys. Lett. 48,A, 187, (1974).
- 32 J. LEGRAND, B. SEGARD, B. KROSTA et B. MACKE,
Rev. Sci. Instr. 49, 4, 526, (1978).
- 33 M.S. FELD, A. SANCHEZ, A. JAVAN et B.J. FELDMAN,
dans le rapport du Colloque international d'Aussoy (1971) intitulé :
Spectroscopie sans largeur Doppler des systèmes moléculaires simples.
E. C.N.R.S. n°217, page 87 (1974).
- 34 J. LEGRAND et B. MACKE.
A paraître dans Opt. Com. 1979.
- 35 R.G. BREWER et R.T. SHOEMAKER,
Phys. Rev. Lett. 27, 631, (1971).
- 36 B. MACKE et P. GLORIEUX,
Chem. Phys. Lett. 14, 85, (1972).
- 37 T. AMANO et T. SHIMIZU,
J. Phys. Soc. of Jap. 35, 237, (1973).
- 38 R.H. DICKE et R.H. ROMER,
Rev. Sci. Instr. 26, 915, (1955).
- 39 M. DUCLOY,
Compte Rendu Acad. Sciences, PARIS, 285.B, (1977).