



50376 1983 77

### présentée à

L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET TECHNIQUES DE LILLE

pour obtenir le titre de

# **DOCTEUR DE 3ème CYCLE**

par

Hubert DÈVE

# INFLUENCE DES INSTABILITES DE FREQUENCE DE SOURCE EN SPECTROSCOPIE A HAUTE RESOLUTION



Soutenue le 10 Novembre 1983 devant la Commission d'Examen

Membres du Jury :

M. WERTHEIMER M. ROHART M. JOURNEL M. MACKE M. ROLLAND Président Rapporteur Examinateur Examinateur Examinateur

## **U.E.R. DE PHYSIQUE FONDAMENTALE**

Ce travail a été réalisé à l'U.E.R. de Physique Fondamentale de l'Université des Sciences et Techniques de Lille, dans le Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne, laboratoire associé au C.N.R.S., dirigé par Monsieur le Professeur WERTHEIMER qui a bien voulu me faire l'honneur de présider le jury. Qu'il trouve ici l'expression de ma profonde gratitude.

Je suis très sensible à l'honneur que me font Messieurs JOURNEL et ROLLAND qui ont accepté de se joindre au jury pour examiner ce travail.

Depuis mon entrée au laboratoire, Monsieur MACKE n'a cessé de me prodiguer ses conseils. Je l'en remercie infiniment.

Je tiens à remercier François ROHART qui a suivi les différentes phases de ce travail avec un intérêt continu et une minutieuse patience.

J'accorde toute ma reconnaissance à l'équipe du laboratoire ; je tiens à remercier plus particulièrement Bernard SEGARD.

Je remercie également l'ensemble des techniciens du Laboratoire et de l'U.E.R. de Physique Fondamentale pour leur contribution à la réalisation de ce travail.

Je remercie enfin ceux qui m'ont aidé dans la réalisation matérielle de <del>ce</del> mémoire : Madame BOEREZ l'a dactylographié, Monsieur RAFFAUD l'a illustré et le Personnel du Service de Polycopie de l'U.E.R. en a assuré la reproduction.

# SOMMAIRE

INTRODUCTION	1
CHAPITRE I : CARACTÉRISATION DU BRUIT DES SOURCES	
INTRODUCTION	5
I - 1 : Caractérisation théorique du bruit des sources : modèle	*
et définitions	6
I.1.1/ Modèle mathématique du signal issu d'une source .	6
I.1.2/ Modèle de bruit de fréquence à diffusion de phase	7
I.1.3/ Pureté spectrale du signal	19
I - 2 : Détermination expérimentale du bruit des sources	29
I.2.1/ Rappel de quelques méthodes	29
I.2.2/ La méthode de discrimination de fréquence	31
I.2.3/ Description des sources utilisées	37
I.2.4/ Résultats expérimentaux	47
CONCLUSION	52

# CHAPITRE II : INFLUENCE DU BRUIT DE FRÉQUENCE EN SPEC-

## TROSCOPIE RÉSOLUE DANS LE TEMPS

INTRODUCTION	53
II - 1 : Présentation théorique	56
II.1.1/ Equations de Bloch Maxwell en présence d'un bruit	
de fréquence	56
II.1.2/ Solutions des équations de Bloch Maxwell	58
II.1.3/ Etude de l'amortissement supplémentaire dû au	
bruit de fréquence	66
II - 2 : Dispositif expérimental	75
II.2.1/ Méthode de modulation Stark	75
II.2.2/ Caractérisation du bruit : Analyse spectrale du	
bruit délivré par le générateur de bruit	77
II.2.3/ Description du dispositif expérimental	79

II - 3 : Résultats expérimentaux	83
II.3.1/ Précession optique	83
II.3.2/ Echos de photons	88
Conclusion	95
II - 4 : Analogie avec d'autres processus de diffusion	95

# CHAPITRE III : INFLUENCE DU BRUIT DE FRÉQUENCE EN SPEC-

## TROSCOPIE D'ABSORPTION SATURÉE

INTRODUCTION	99
III - 1 : Dispositif expérimental	102
III.1.1/ La molécule	102
III.1.2/ Source	104
III.1.3/ Modulation aléatoire de la fréquence de la source	104
III.1.4/ Détection	105
III.1.5/ Modulation de l'absorption et acquisition des	
signaux	106
III - 2 : Observations de l'influence du bruit de fréquence sur	
les signaux de Lamb dip	107
III.2.1/ Détermination numérique	107
III.2.2/ Résultats expérimentaux	110
III - 3 : Retrécissement par le mouvement - Analogie	112
III - 4 : Première approche théorique du Lamb dip en présence de	
bruit de fréquence	115
III.4.1/ Généralités	115
III.4.2/ Différence de populations induite par le champ	
de pompe	117
III.4.3/ Signal de sonde	119
III.4.4/ Résolution exacte des équations	120
CONCLUSION	126
CONCLUSION ·····	129
REFERENCES ·····	131

## INTRODUCTION

- 1 -

Dans les expériences de spectroscopie à haute résolution, les signaux physiques présentent ou une largeur spectrale étroite - Lamb dip en spectroscopie d'absorption saturée - ou un temps de cohérence long - échos de photons en spectroscopie résolue dans le temps -.

Ces méthodes de spectroscopie à haute résolution nécessitent alors une bonne pureté spectrale du champ électromagnétique de la source ou une bonne stabilité de sa fréquence, pour conserver le gain en résolution qu'apportent ces techniques.

De plus on peut se demander quelle est l'influence exacte d'une source relativement médiocre sur les signaux observés. En spectroscopie conventionnelle, c'est-à-dire linéaire, le champ électromagnétique n'est rien d'autre qu'une sonde qui sert à examiner les propriétés d'un système ; sa mauvaise qualité dégrade les signaux obtenus, mais sans affecter le système lui-même. Par contre, en spectroscopie à haute résolution, c'est-à-dire en régime non linéaire, le système est modifié lors de la mesure : il reflète donc les imperfections du champ électromagnétique (1).

Depuis quelques années, un grand nombre de travaux se sont intéressés au rôle de la pureté spectrale des sources spectroscopiques. Ceci est motivé d'une part par l'utilisation de lasers en régime d'impulsions qui présentent à la fois des fluctuations de la phase (ou de la fréquence) et de l'amplitude du champ électromagnétique. On trouvera dans l'article de Georges (2) une revue assez complète de ces problèmes et des modèles utilisés. Le problème de la stabilité des sources prend d'autre part un rôle grandissant avec le développement de la spectroscopie à très haute résolution et la réalisation d'étalons de fréquence de très haute performance : on peut citer par exemple le 3ème Symposium sur les étalons de fréquence et la métrologie (3). Dans ce travail nous nous sommes intéressés à ce deuxième type de problème et plus particulièrement à observer expérimentalement le rôle de la pureté spectrale du champ électromagnétique sur des expériences de spectroscopie à haute résolution, ceci en dégradant de manière contrôlée le spectre d'une source quasi parfaite. Dans ce type d'expériences, les sources utilisées ne présentent généralement pas de bruit d'amplitude notable, tandis que les fluctuations de fréquence peuvent devenir sensibles eu égard à la haute résolution recherchée (c'est le cas par exemple des lasers utilisés en régime continu ou des klystrons que nous avons utilisés dans notre étude). Le problème peut alors être abordé de deux façons différentes selon qu'on s'intéresse à des expériences en régime stationnaire ou en régime transitoire.

 i) Dans le cas des régimes stationnaires, le couplage entre l'échantillon et le rayonnement est très long de sorte que seul le comportement à long terme des fluctuations de fréquence est à prendre en considération.

 ii) Dans le cas des régimes transitoires, au contraire, le couplage est très court : le comportement à court terme de la source peut alors conduire à des effets spécifiques (cas de la limite réversible (4)).

Cette étude a été entreprise à la suite de l'observation par Rohart et Macke (5) d'échos de photons présentant un amortissement supplémentaire dû à l'utilisation fortuite d'une source de pureté spectrale médiocre. Leur travail avait déjà montré la nécéssité d'avoir une description aussi précise que possible des fluctuations de fréquence de la source. Nous consacrerons donc le premier chapitre à la caractérisation du bruit de fréquence des sources. On définira correctement les concepts utilisés dans ce domaine, et le modèle que l'on adaptera à nos sources. La fin de ce chapitre sera illustrée par une analyse spectrale des sources microondes (klystrons) que nous utiliserons dans la suite de ce travail.

- 2 -

L'influence des instabilités de fréquence en spectroscopie résolue dans le temps sera étudiée dans le chapitre II. L'amortissement supplémentaire dû à ces instabilités de fréquence sera déterminé théoriquement dans le cas des signaux de précession optique et d'échos de photons. Ces prévisions théoriques seront confirmées par une étude expérimentale. Nous conclurons ce chapitre sur l'avantage des transitoires en présence de sources présentant des fluctuations "lentes" de fréquence. Le chapitre III analysera l'influence du bruit de fréquence en spectroscopie d'absorption saturée. Une expérience de Lamb dip sera présentée et les résultats expérimentaux montreront que cette technique de haute résolution, contrairement à celle des échos de photons, se révèle mal adaptée en présence de sources médiocres, présentant des fluctuations de fréquence lentes ou rapides. Une première étude théorique sur les signaux de Lamb dip en présence d'un bruit de fréquence, en accord avec les résultats expérimentaux, terminera ce dernier chapitre.

- 3 -

# CHAPITRE I

# CARACTERISATION DU BRUIT

# DES SOURCES

#### INTRODUCTION

Les expériences de spectroscopie microonde sont réalisées à l'aide de klystrons : ce sont des sources de très grandes qualités dont le bruit d'amplitude est négligeable (6). Par contre les instabilités de fréquence, qui restent toutefois modérées, peuvent devenir sensibles dans le cas des expériences de spectroscopie à très haute résolution, c'est-à-dire lorsque le signal physique a une largeur spectrale très faible (Lamb dip) ou une durée de cohérence très longue (échos de photons). La nécessité d'une bonne pureté spectrale ou d'une bonne stabilité de la fréquence du champ électromagnétique d'une source a été soulignée par Rohart (7) dans des expériences d'échos de photons de longue durée, mais l'étude est restée fort ponctuelle. Il est donc nécessaire de faire une étude plus systématique pour caractériser le bruit de ces sources. Cette étude n'est cependant pas limitée à la caractérisation du bruit des sources microondes (klystrons), mais elle est également valable dans le cas d'expériences réalisées à l'aide de sources lasers.

La description du bruit des sources par des paramètres physiquement mesurables n'est pas un problème simple : on doit définir avec précision le modèle mathématique utilisé pour représenter le champ de sortie d'une source. Les trois modèles couramment employés dans ces études ont été passés en revue par Georges (2) :

- Le champ à diffusion de phase : l'amplitude est supposée être une constante réelle, tandis que la phase fluctue à la manière d'un processus de diffusion. Lamb (8) a utilisé ce modèle pour étudier la distribution spectrale d'un laser continu.

- Le champ à amplitude gaussienne qui a une phase constante, mais une amplitude réelle qui fluctue avec une distribution gaussienne. C'est approximativement le cas des lasers en impulsions.

- Le champ chaotique où amplitude et phase fluctuent indépendamment l'une de l'autre.

- 5 -

Nous avons retenu le modèle à diffusion de phase dont le formalisme semble très bien adapté pour notre étude : en effet, les fluctuations d'amplitude sont négligeables tandis que la phase est susceptible de diffuser.

Dans une première partie, nous caractériserons d'une façon théorique le bruit des sources. Dans une seconde partie, nous décrirons brièvement quelques méthodes utilisées ordinairement pour caractériser le bruit de source et nous présenterons la méthode choisie pour déterminer le spectre des sources à analyser. Des résultats et comparaisons concluront ce chapitre. Une revue a déjà été publiée dans le numéro spécial sur la stabilité de fréquence des Proceedings of the I.E.E.E. (1966, vol.54 n°2). Il faut noter cependant que de grands progrés ont été réalisés depuis pour définir de façon plus claire et plus rigoureuse les concepts utilisés. On peut citer entre autres : Rutman (9,10) Picinbono (11).

#### I - 1) CARACTERISATION THEORIQUE DU BRUIT DES SOURCES : MODELE ET

#### DEFINITIONS

#### I-1-1) Modèle mathématique du signal issu d'une source

Le signal de sortie d'une source idéale (sans bruit) peut être représenté par la relation :

$$E(t) = E_{cos} \left[ \tilde{\omega} t \right]$$
 (I.1)

E et  $\tilde{\omega}$  représentent respectivement l'amplitude et la fréquence angulaire du signal.

Dans ce modèle, toute l'énergie du signal est concentrée sur la fréquence  $\bar{\omega}$  : la qualité du signal est alors parfaite. En réalité, le signal est dégradé par un certain nombre de sources de bruit qu'il faut inclure dans le modèle. Le signal de sortie d'une source réelle correspond alors à :

$$E(t) = \left[E_{o} + e(t)\right] \cos\left[\tilde{\omega} t + \phi(t)\right] \qquad (I.2)$$

e(t) et  $\phi(t)$  sont des fonctions aléatoires qui décrivent respectivement les fluctuations d'amplitude (ou bruit d'amplitude) autour de E<sub>o</sub> et les fluctuations de phase (ou bruit de phase) autour de  $\omega$  t. La fréquence angulaire instantanée est la dérivée temporelle de la phase totale :

$$\omega(t) = \bar{\omega} + \dot{\phi}(t) \tag{I.3}$$

La fonction aléatoire  $\phi(t)$  représente les fluctuations de fréquence (ou bruit de fréquence) autour de  $\omega$ .

Pour les sources de très haute qualité, la théorie (9) et l'expérience montrent que les effets des fluctuations d'amplitude sont généralement négligeables devant ceux des fluctuations de phase. C'est le cas des sources microondes utilisées dans ce travail (klystrons Varian). Pour donner un ordre de grandeur de ce bruit d'amplitude, Johnson et al (6) obtiennent pour une source, de la gamme 4-6 GHz (klystron Reflex Varian) un bruit d'amplitude inférieur à -150 dB/Hz à 10 KHz de la porteuse.

Nous écrivons alors le signal de sortie sous la forme :

$$E(t) = E \cos \left[ \omega t + \phi(t) \right]$$
 (I.4)

## I-1-2) Modèle de bruit de fréquence à diffusion de phase

Si dans un modèle, la fréquence du champ électromagnétique d'une source peut être stationnaire du second ordre, la phase instantanée n'a généralement pas cette propriété (11).

Dans le cas des expériences que nous avons réalisées, il convient d'utiliser le modèle de bruit de fréquence à diffusion de phase : en effet, le processus aléatoire  $\phi(t)$  peut être considéré comme stationnaire du second ordre : l'excursion et le rythme des dérives de la

- 7 -

la fréquence de la source restent constants pendant la durée des mesures ; par contre la phase  $\phi(t)$  est susceptible de diffuser. Ce modèle possède une analogie formelle avec le modèle du mouvement brownien d'une particule libre (12): en effet la vitesse de cette dernière est une variable aléatoire également stationnaire du second ordre alors que sa position ne l'est pas.

## I.1.2.1) Définitions générales

Dans cette section, nous allons caractériser les fluctuations de fréquence, ou le bruit de fréquence, dans le domaine des fréquences de Fourier. Puisque  $\dot{\phi}(t)$  est une variable aléatoire, stationnaire, elle sera décrite par des paramètres statistiques notamment la fonction d'autocorrélation ou la densité spectrale de puissance.

Le processus aléatoire  $\dot{\phi}(t)$  centré (de moyenne nulle), gaussien et stationnaire de second ordre peut être caractérisé par sa fonction d'autocorrélation indépendante du temps t (13):

$$R_{\dot{\phi}}(\tau) = \langle \dot{\phi}(t) \cdot \dot{\phi}(t+\tau) \rangle \qquad (I.5)$$

La densité spectrale de puissance de  $\dot{\phi}(t)$  est la transformée de Fourier de sa fonction d'autocorrélation :

$$S_{\phi}(\Omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} R_{\phi}(\tau) e^{-i\Omega\tau} d\tau \qquad (I.6)$$

 $S^{*}_{\Phi}(\Omega)$  est une fonction réelle, paire et positive.

De même réciproquement, on a :

$$R_{\phi}^{*}(\tau) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} S_{\phi}^{*}(\Omega) e^{i\Omega\tau} d\Omega \qquad (I.6')$$

- 8 -

Le processus aléatoire  $\dot{\phi}(t)$  est défini par deux paramètres :

 $-\sigma_{\dot{\varphi}} = \left[ \langle \dot{\varphi}(t) . \dot{\varphi}(t) \rangle \right]^{1/2} = \left[ R_{\dot{\varphi}}(0) \right]^{1/2}$  représente la valeur quadratique moyenne des écarts de fréquence.

- le temps de corrélation  $\tau_c$  exprime le fait que les grandeurs  $\dot{\phi}(t)$  et  $\dot{\phi}(t+\tau)$  sont statistiquement indépendantes dès que  $\tau > \tau_c$ .

La figure I-1 représente le processus aléatoire gaussien  $\dot{\phi}(t)$ défini par ses deux paramètres  $\sigma_{\dot{\phi}}$  et  $\tau_c$ . Le temps de corrélation  $\tau_c$ décrit le rythme des fluctuations de fréquence. A des fluctuations de fréquence rapides (respectivement lentes) correspond un temps de corrélation court (respectivement long). Dans les deux cas, la dispersion du processus  $\dot{\phi}(t)$  caractérisée par sa densité de probabilité gaussienne  $p(\dot{\phi})$  est cependant la même.

Dans le cas général, le processus  $\phi(t) = \int_0^t \dot{\phi}(\theta) d\theta$  n'est pas stationnaire : on ne peut parler de S<sub> $\phi$ </sub> et R<sub> $\phi$ </sub>. Le processus est donc dit à diffusion de phase.

Par contre, dans le cas où  $\phi(t)$  est un processus stationnaire du second ordre, il peut être défini par sa fonction d'autocorrélation  $R_{\phi}(\tau)$  et son spectre de puissance  $S_{\phi}(\Omega)$  (11). On a alors la relation (10):

$$S_{\phi}^{*}(\Omega) = \Omega^{2} S_{\phi}(\Omega)$$
 (I.7)

L'équation (I.7) montre en particulier que dès que  $S_{\varphi}^{*}(0)$  n'est pas nul, la phase diffuse.

### I.1.2.2) Exemple : le modèle à sauts de fréquence

Les relations précédentes sont tout à fait générales. Elles peuvent être illustrées simplement dans le cas particulier du modèle à sauts de fréquence proposé par Rutman (10).

- 9 -





- 10 -

#### a) Description du modèle

La fréquence angulaire instantannée s'écrit :  $\omega(t) = \bar{\omega} + \dot{\phi}(t)$ et  $\dot{\phi}(t)$  représente un processus aléatoire discontinu et stationnaire décrivant les sauts de la fréquence (figure I-2). Les valeurs de  $\dot{\phi}(t)$ avant et après chaque saut sont supposées statistiquement indépendantes.

On appelle q le nombre moyen de sauts par unité de temps ; la probabilité d'avoir N sauts durant l'instant  $\tau$  est une distribution de Poisson donnée par (10) :

Prob 
$$[N, \tau] = \frac{(q\tau)^N e^{-q\tau}}{N!}$$

La fonction d'autocorrélation d'un tel processus est (10) :

$$R_{\phi}^{\bullet}(\tau) = \sigma_{\phi}^{2} e^{-q\tau}$$

Son temps de corrélation est alors  $\tau = 1/q$  et représente la durée moyenne entre deux sauts successifs. La densité spectrale de puissance de la fréquence est alors une courbe de Lorentz de largeur q :

$$S_{\phi}(\Omega) = \frac{2q \sigma_{\phi}^{2}}{q^{2} + \Omega^{2}}$$
(I.8)

### b) Analogie avec le mouvement brownien

Ce modèle de diffusion de phase avec sauts de fréquence apparaît comme un cas particulier de la théorie du mouvement brownien (12). En effet comme la vitesse d'une particule en mouvement brownien,  $\dot{\phi}(t)$ est un processus aléatoire stationnaire satisfaisant à l'équation de Langevin (14) :

$$\phi(t) + q \phi(t) = F(t)$$
 (I.9)

où : - q est un coefficient de frottement décrivant le taux des sauts de fréquence

- F(t) est une force fluctuante de fonction d'autocorrélation  $R_F(\tau)$  et de densité spectrale de puissance  $S_F(\Omega)$ .

- 11 -



FIGURE I-2 : Processus aléatoire discontinu  $\dot{\phi}(t)$  (modèle à sauts de fréquence (10)). Le temps de corrélation 1/q représente la durée moyenne  $\langle t_i - t_{i-1} \rangle$  entre deux sauts de fréquence successifs. Il est intéressant de résoudre l'équation de Langevin : en multipliant l'équation (I.9) par la même expression au temps  $t+\tau$ , puis en prenant les moyennes temporelles, il vient :

$$R_{\phi}^{"}(\tau) + q^{2} R_{\phi}^{\bullet}(\tau) + q \left[ R_{\phi\phi}^{"}(\tau) + R_{\phi\phi}^{"}(\tau) \right] = R_{F}(\tau)$$

or : 
$$R_{\phi\phi}(\tau) + R_{\phi\phi}(\tau) = \frac{d}{d\tau} R_{\phi}(\tau) - \frac{d}{d\tau} R_{\phi}(\tau) = 0$$

On a alors :

$$\mathsf{R}^{\bullet\bullet}_{\phi}(\tau) + \mathsf{q}^2 \mathsf{R}^{\bullet}_{\phi}(\tau) = \mathsf{R}_{\mathsf{F}}(\tau)$$

Et en prenant les transformées de Fourier, on obtient :

$$S_{\phi}(\Omega) + q^2 S_{\phi}(\Omega) = S_F(\Omega)$$

Le processus  $\phi(t)$  étant stationnaire, on a la relation :

$$S_{\Phi}^{\bullet}(\Omega) = \Omega^2 S_{\Phi}^{\bullet}(\Omega)$$

d'où :  $S_{\phi}^{\bullet}(\Omega) = \frac{S_{F}(\Omega)}{q^{2} + \Omega^{2}}$ 

Dans le cas particulier où  $S_F(\Omega) = 2 \sigma_{\phi}^2 q$  (ou encore  $R_F(\tau) = 2 \sigma_{\phi}^2 q \delta(\tau)$ ), la force fluctuante présente un spectre blanc et on retrouve le modèle à sauts de fréquence ; la fonction de Dirac provient de la nature instantanée des sauts de fréquence.

## I.1.2.3) Définitions de quelques paramètres dérivés

Il est intéressant d'introduire deux paramètres que l'on peut calculer à partir de  $S^{\bullet}_{\phi}(\Omega)$  : la variance de l'erreur de phase accumulée pendant la durée  $\tau$  et la variance d'Allan. La variance de l'erreur de phase sera utilisée souvent dans la suite de ce travail (spectre du champ électromagnétique) et nous servira dans les expériences de spectroscopie résolue dans le temps que nous considèrerons dans le second chapitre. La variance d'Allan sert surtout à caractériser la stabilité de la fréquence d'une source .

a) Variance de l'erreur de phase accumulée au cours de la durée  $\tau$ 

Elle est définie par (5) :

$$\sigma_{\phi}^{2}(\tau) = \left\langle \left[ \int_{t}^{t+\tau} \dot{\phi}(\theta) d\theta \right]^{2} \right\rangle$$
 (I.10)

$$= \left\langle \left[ \phi(t+\tau) - \phi(t) \right]^2 \right\rangle$$
 (I.10')

Selon que la phase  $\varphi(t)$  est stationnaire ou diffusante, la quantité  $\sigma_\varphi^2(\tau)$  tendra vers une limite ou vers l'infini, lorsque  $\tau$  tendra vers l'infini.

En faisant apparaître la fonction d'autocorrélation R  $_{\varphi}^{\bullet}$  dans l'équation (I.10), la variance de l'erreur de phase s'écrit alors :

$$\sigma_{\phi}^{2}(\tau) = \int_{t}^{t+\tau} \int_{t}^{t+\tau} R_{\phi}^{\bullet}(\theta' - \theta) d\theta' d\theta \qquad (I.11)$$

Puis en écrivant que  $R_{\phi}^{\bullet}$  est la transformée de Fourier de  $S_{\phi}^{\bullet}(\Omega)$ , on montre alors la relation importante entre la variance de l'erreur de phase et  $S_{\phi}^{\bullet}(\Omega)$  (10) :

$$\sigma_{\phi}^{2}(\tau) = \tau \int_{-\infty}^{+\infty} S_{\phi}(\Omega) \left[ \operatorname{sinc}\left(\frac{\Omega\tau}{2}\right) \right]^{2} d\left(\frac{\Omega\tau}{2\pi}\right)$$
(I.11')

avec sinc(x) =(sinx)/x. L'équation (I.11') n'est généralement pas inversible : s'il est possible de calculer  $\sigma_{\phi}^2(\tau)$  connaissant  $S_{\phi}^{\bullet}(\Omega)$  ; l'inverse ne l'est généralement pas.

Dans le modèle de bruit de fréquence à diffusion de phase que nous avons adopté, la source est caractérisée par le temps de diffusion de la phase  $\tau_d$  tel que  $\sigma_{\phi}(\tau_d) = 1 \text{ Rd}$  (14).

La description de  $\sigma_{\varphi}^2(\tau)$  en fonction de la durée  $\tau$  conduit aux notions de comportements à court et long termes : les valeurs asymptotiques de  $\sigma_{\varphi}^2(\tau)$  peuvent être facilement calculées :

i) Dans le comportement à court terme, lorsque q $\tau \ll 1$ , c'est-à-dire lorsqu'il y a peu de sauts de fréquence, la fonction  $\left[\operatorname{sinc}\left(\frac{\Omega\tau}{2}\right)\right]^2$  peut être approximée à 1 ; l'équation générale (I.11') devient alors :

$$\sigma_{\phi}^{2}(\tau) = \sigma_{\phi}^{2} \tau^{2} \qquad (I.12)$$

Cette loi est caractéristique de la limite réversible que l'on rencontre dans la théorie du mouvement brownien (4) .

ii) Dans le comportement à long terme, lorsque  $q\tau \gg 1$ , c'est-à-dire lorsqu'il y a beaucoup de sauts de fréquence, la fonction  $\left[ \operatorname{sinc} \left( \frac{\Omega \tau}{2} \right) \right]^2$ apparaissant dans l'équation (I.11') peut être considérée comme un pic de Dirac centré sur  $\Omega = 0$ , et alors l'équation (I.11) se réduit à :

$$\sigma_{\phi}^{2}(\tau) = S_{\phi}^{\bullet}(0)\tau \qquad (I.13)$$

L'équation (I.13) est caractéristique de la limite irréversible dans la théorie du mouvement brownien (4). La plupart des calculs dans la théorie du laser sont faits dans cette limite qui correspond à un temps de corrélation (1/q) court devant tous les autres paramètres de l'expérience.

L'équation (I.13) montre que la variance de l'erreur de phase accumulée sur une durée  $\tau$  croît indéfiniment avec  $\tau$  si la valeur de S $\cdot_{\phi}(0)$  est non nulle : en conséquence une fréquence instantanée à densité spectrale non nulle à l'origine conduit nécessairement à un modèle de diffusion de phase (15)(cf. l'équation I.7).

Ce processus de diffusion peut être comparé à la diffusion d'une particule en mouvement brownien (12). En effet à l'instant  $\tau$ , la variance de la position  $x(\tau)$  d'une particule en mouvement brownien s'écrit :

 $\sigma^2 \left[ x(\tau) \right] \sim \tau$ 

La ressemblance de cette équation avec l'équation (I.13) fait dire que la phase diffuse selon le mouvement brownien.

b) Variance d'Allan

Pour caractériser la stabilité de la fréquence d'une source et en obtenir une estimation expérimentale, on est amené à utiliser la notion de variance d'échantillon de taille N : ensemble de N valeurs de la fréquence relative, mesurées sur des intervalles de temps τ.

Le sous comité I.E.E.E. pour la stabilité de fréquence (février 1966) a proposé d'utiliser, dans un souci de simplicité, la variance d'Allan (16).

Cette variance est obtenue en considérant un ensemble de couples de mesures successives, sans temps mort, et de durée τ, de la fréquence relative ; elle s'écrit alors :

$$\langle \sigma_{a}^{2}(2,\tau,\tau) \rangle = \frac{\left(\vec{\omega}\tau\right)^{-2}}{2} \langle \left[ \int_{t+\tau}^{t+2\tau} \dot{\phi}(\theta) \ d\theta - \int_{t}^{t+\tau} \dot{\phi}(\theta) \ d\theta \right]^{2} \rangle \quad (I.14)$$

La variance d'Allan est une grandeur idéale puisque sa détermination nécessite une infinité de couples de mesure. On obtient une estimation expérimentale de la variance d'Allan à partir d'un nombre fini de valeurs de  $\sigma_a^2$  (2, $\tau$ , $\tau$ ).

Nous avons pu établir une relation entre la variance d'Allan et la variance de l'erreur de phase. L'équation (I.14) peut s'écrire :

$$\overline{\langle \sigma_{a}^{2}(2,\tau,\tau) \rangle} = \frac{\left(\overline{\omega}\tau\right)^{-2}}{2} \left\langle \left[ \phi(2\tau) - 2\phi(\tau) + \phi(0) \right]^{2} \right\rangle$$

Ce qui s'écrit encore :

$$\langle \sigma_{a}^{2}(2,\tau,\tau) \rangle = \frac{(\bar{\omega}\tau)^{-2}}{2} \left[ \langle \left[ \phi(2\tau) - \phi(0) \right]^{2} \rangle + 4 \langle \left[ \phi(\tau) - \phi(0) \right]^{2} \rangle \right] \\ - 4 \langle \left[ \phi(2\tau) - \phi(0) \right] \left[ \phi(\tau) - \phi(0) \right] \rangle \right]$$

En remarquant que :

$$\langle \left[ \phi(2\tau) - \phi(0) \right] \left[ \phi(\tau) - \phi(0) \right] \rangle = \int_{0}^{2\tau} \int_{0}^{\tau} R_{\phi}^{*}(\theta_{1} - \theta_{2}) d\theta_{1} d\theta_{2}$$

et en remplaçant  $\mathsf{R}^{*}_{\varphi}$  par son expression de fonction de  $\mathsf{S}^{*}_{\varphi}$  (équ. I.6'), il vient alors :

$$\langle [\phi(2\tau) - \phi(0)] [\phi(\tau) - \phi(0)] \rangle = \frac{1}{2} \sigma_{\phi}^2 (2\tau)$$

D'après la définition de la variance de l'erreur de phase, (I.14) s'écrit finalement :

$$\left\langle \sigma_{a}^{2}(2,\tau,\tau) \right\rangle = \frac{\left(\bar{\omega}\tau\right)^{-2}}{2} \left[ 4 \sigma_{\phi}^{2}(\tau) - \sigma_{\phi}^{2}(2\tau) \right]$$
(I.15)

La variance d'Allan s'exprime donc en fonction des variances de l'erreur de phase accumulée pendant les durées τ et 2τ. L'équation (I.15) est générale et nous verrons que la variance d'Allan est bien adaptée pour décrire les expériences d'échos de photons étudiées dans le second chapitre.

## I.1.2.4) Conclusion

Nous avons vu que la densité spectrale de puissance de la fréquence  $S^{\bullet}_{\phi}(\Omega)$  (ou sa fonction d'autocorrélation  $R^{\bullet}_{\phi}(\tau)$ ) caractérise complètement le bruit de fréquence et comporte toutes les informations concernant les caractéristiques du bruit de fréquence  $\sigma^{\bullet}_{\phi}$  et q.

Le tableau I-1 donne la fonction d'autocorrélation  $R_{\phi}^{\bullet}(\tau)$ , la variance de l'erreur de phase  $\sigma_{\phi}^{2}(\tau)$  calculée dans le cas général et dans les comportements à court et à long termes, ainsi que la variance d'Allan, pour chacun des trois modèles de  $S_{\phi}^{\bullet}(\Omega)$  que l'on rencontre le plus souvent dans la littérature (5) :

i) le spectre lorentzien que l'on a déjà vu dans le modèle à sauts de fréquence

 ii) le spectre gaussien qui nous servira dans les prochains chapitres pour décrire le bruit de fréquence avec lequel nous allons moduler nos sources TABLEAU 1-1 : Paramètres théoriques correspondant aux trois modèles du spectre de bruit de fréquence  $S_{igoplus}^{+}(\Omega)$ .

(BILLE)

- 18 -								
dt>>1 م <sup>2</sup> (2,1	, α <sup>2</sup> (1	ς <sup>2</sup> (2,1	$\sigma_{2}^{\pm}(\tau)$	σ <mark>2</mark> (τ)	R•(⊺)	ຊ•(ເນ) ເ	SPECTRE	
τ)		(1,		(2 $\sigma_{\phi}^{2}/c$				
		2 σ <sup>2</sup> <sub>φ</sub> qτ/3 <sup>-2</sup>		<sup>2</sup> ) [qτ-1+exp(-qτ]	2 φ exp(-q τ )	$\frac{2}{q} \frac{\sigma_{\phi}^2}{1+\Omega^2/q^2}$	LORENTZIEN	
S <sup>+</sup> <sub>φ</sub> (0)/ω <sup>2</sup> τ	, S, (0) ↓.	$\sigma_{\phi}^2 q^2 \tau^2 / 2 \bar{\omega}^2$	α <mark>¢</mark> τ <sup>2</sup>	$\sigma_{\phi}^{2}\tau^{2}\left\{\frac{\sqrt{2\pi}}{q\tau}\operatorname{erf}\left(\frac{q\tau}{\sqrt{2}}\right)-\frac{2}{q^{2}\tau^{2}}\left[1-\exp(-q^{2}\tau^{2}/2)\right]\right\}$	σ <mark>∳</mark> exp(-q <sup>2</sup> τ <sup>2</sup> /2)	$\frac{\sigma_{\phi}^2}{q} = \exp(-\Omega^2/2q^2)$	GAUSSIEN	
	•	$\sigma_{\phi}^2 q^2 \tau^2 / \bar{\omega}^2$		$\sigma_{\phi}^2/q^2 \left[ 2q\tau \operatorname{Arctg}(q\tau) - \operatorname{Log}(1+q^2\tau^2) \right]$	$\sigma_{\phi}^{2} \frac{1}{1+q^{2}\tau^{2}}$	$\frac{\sigma_{\pm}^2}{q} = \exp(-\frac{1}{2} \frac{\Omega}{q})$	EXPONENTIEL	

(111) le spectre exponentiel qui est le mieux adapté pour décrire le bruit de fréquence des sources utilisées.

Les résultats concernant la variance d'Allan à court terme  $(q\tau << 1)$  méritent quelques commentaires. A court terme, la variance d'Allan dépend de la forme exacte du spectre  $S_{\phi}^{\bullet}$ : la variance d'Allan est plus petite dans le cas des spectres gaussien et exponentiel (variation en  $(q\tau)^2$ ) que dans le cas d'un spectre lorentzien (variation en  $q\tau$ ). Par contre, à long terme, la forme exacte du spectre  $S_{\phi}^{\bullet}$  ne joue aucun rôle.

#### I-1-3) Pureté spectrale du signal

Des applications dans de nombreux domaines (spectroscopie, radar Doppler) qui nécessitent une très grande qualité du signal de source, utilisent le spectre de radiofréquence du signal total E(t) pour caractériser la source. C'est cette information qu'on obtient avec un analyseur de spectre.

Le spectre de radiofréquence prend en compte les fluctuations de fréquence, mais aussi les fluctuations d'amplitude e(t) qui contribuent également aux bandes latérales de bruit.

Mais nous allons voir dans la suite de ce paragraphe que le spectre de radiofréquence est pourtant incomplet pour caractériser convenablement une source et que seul le spectre de puissance de fréquence  $S^{\bullet}_{\phi}(\Omega)$ , portant toutes les informations  $(\sigma^{\bullet}_{\phi},q)$  permet de décrire correctement une source.

Dans notre modèle où le bruit d'amplitude e(t) est négligeable, une relation entre le spectre de radiofréquence et  $S_{\phi}^{*}(\Omega)$  peut être établie si les fluctuations de fréquence sont stationnaires et gaussiennes. C'est cette relation qui montrera la caractère incomplet du spectre de radiofréquence.

## I.1.3.1) Définition du spectre de radiofréquence

Le spectre de radiofréquence est défini comme la densité spectrale de puissance  $S_{F}(\Omega)$  du signal complet  $E(t) = E_{\Omega} \cos(\omega t + \phi(t))$ :

$$S_{E}(\Omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} R_{E}(\tau) e^{-i\Omega\tau} d\tau \qquad (I.16)$$

où  $R_{r}(\tau) = \langle E(t) E(t+\tau) \rangle$ est la fonction d'autocorrélation de E(t).

Le spectre de radiofréquence représente la répartition de la puissance du signal E(t) autour de la fréquence centrale  $\tilde{\omega}$  (10) : — Pour un signal issu d'une source idéale, toute la puissance est concentrée sur la fréquence porteuse  $\tilde{\omega}$  ; le spectre correspond à un pic de Dirac centré sur  $\tilde{\omega}$  (figure I-3-a).

- Pour un signal issu d'une source réelle, deux cas se présentent selon que le processus  $\phi(t)$  est stationnaire ou à diffusion. Si le bruit de phase  $\phi(t)$  est un processus stationnaire,  $S_E(\Omega)$  contient une composante discrète représentée par une distribution de Dirac centrée sur la fréquence porteuse  $\tilde{\omega}$  (figure I-3-b). Si la phase  $\phi(t)$  diffuse,  $S_E(\Omega)$ est une courbe continue centrée sur la fréquence porteuse  $\tilde{\omega}$  (figure I-3-c).

# I.1.3.2) <u>Relation entre le spectre de radiofréquence et</u> l'erreur de phase :

Une relation entre le spectre de radiofréquence et la variance de l'erreur de phase peut être établie, à condition que les fluctuations de fréquence  $\phi(t)$  soient représentables par un processus aléatoire gaussien et stationnaire. Il est intéressant d'écrire E(t) sous la forme :

$$E(t) = Re[z(t)]$$

avec  $z(t) = E_0 \exp i\left[\overline{\omega}t + \phi(t)\right]$ 



> ( BUS ULL

- 21 -

Le calcul de la fonction d'autocorrélation de E(t) donne :

$$R_{E}(\tau) = \frac{1}{2} \left[ \left\langle z(t) \cdot z^{*}(t+\tau) \right\rangle \right]$$
$$= \frac{E_{0}^{2}}{2} \cos \bar{\omega} \tau \left\langle \exp \left\{ -i \left[ \phi(t+\tau) - \phi(t) \right] \right\} \right\rangle$$

 $\left[\phi(t+\tau) - \phi(t)\right]$  est une variable aléatoire gaussienne. En utilisant la relation (12) :

$$\langle exp(-ix) \rangle = exp\left[ - \langle x^2 \rangle / 2 \right]$$

valable pour une variable aléatoire gaussienne x et en tenant compte de la définition de la variance de l'erreur de phase (éq. I.10'), il vient :

$$\langle \exp \left[ -i \left[ \phi(t+\tau) - \phi(t) \right] \right] \rangle = \exp \left[ -\sigma_{\phi}^{2}(\tau)/2 \right]$$

 $R_{r}(\tau)$  s'écrit alors :

$$R_{E}(\tau) = \frac{1}{2} E_{o}^{2} \cos \bar{\omega} \tau \exp\left[-\sigma_{\phi}^{2}(\tau)/2\right]$$
 (I.17)

La fonction d'autocorrélation de E(t) fait apparaître la diffusion de phase.

La transformée de Fourier d'un produit de deux fonctions est le produit de convolution des transformées de Fourier de chacune des deux fonctions ;  $S_{_{\rm F}}(\Omega)$  s'écrit alors d'une façon générale :

$$S_{E}(\Omega) = \left[\int_{-\infty}^{+\infty} \exp\left(-\frac{\sigma_{\Phi}^{2}(\tau)}{2}\right) \cos \Omega \tau d\tau\right] * \frac{E_{0}^{2}}{4} \left[\delta(\Omega - \bar{\omega}) + \delta(\Omega + \bar{\omega})\right] \quad (I.18)$$

où \* représente le produit de convolution.

L'équation (I.18) montre que le spectre de E(t) est donc centré sur les fréquences porteuses  $\overline{\omega}$  et  $-\overline{\omega}$ 

### 1.1.3.3) Formes asymptotiques

L'équation (I.18) représente l'expression exacte du spectre du champ électromagnétique de la source quelle que soit la valeur du rapport q/ $\sigma_{\phi}$ , qui représente l'inverse de l'indice de modulation que l'on rencontre dans la théorie de la modulation de fréquence (17).

Il est intéressant d'examiner les deux cas extrêmes  $q/\sigma_{\phi}^{\bullet} < (1 \text{ et } q/\sigma_{\phi}^{\bullet})$  ), car ils donnent tous deux une forme analytique du spectre du champ électromagnétique de la source et ont une interprétation simple. Il faut souligner que Anderson et Weiss (18) ont étudié également ces deux cas pour mettre en évidence le retrécissement par le mouvement en résonance paramagnétique, et ont trouvé des expressions analogues à celles que l'on présente ici.

i) Pour les valeurs de q/ $\sigma_{\phi}^{*}$  << 1, la phase diffuse dès qu'il y a quelques changements de fréquence, c'est-à-dire à court terme (qt << 1). On se trouve alors dans la limite réversible. La diffusion de phase s'écrit :  $\sigma_{\phi}^{2}(\tau) = \sigma_{\phi}^{2} \tau^{2}$ L'équation (I.18) s'intègre exactement :

$$S_{E}(\Omega) = \left[\frac{\sqrt{2\pi}}{\sigma_{\phi}^{*}} \exp\left(-\Omega^{2}/2\sigma_{\phi}^{2}\right)\right] * \frac{E_{o}^{2}}{4} \left[\delta(\Omega - \bar{\omega}) + \delta(\Omega + \bar{\omega})\right]$$
(I.19)

Le spectre de E(t) donné par (I.19) a une forme gaussienne dont la mi largeur à mi hauteur vaut  $\omega_d = \sqrt{2 \log 2} \sigma_{\phi}^{\bullet}$ . Ce résultat était prévisible et s'explique aisément : en effet, la fréquence de la source change de valeur à chaque changement de fréquence de  $\dot{\phi}(t)$  et suivant la loi de probabilité gaussienne p $(\dot{\phi}(t))$  caractérisée par son paramètre  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$ . Un analyseur de spectre détectera un spectre dont la largeur est proportionnelle à l'écart type  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$ .

**ii)** Pour les valeurs de  $q/\sigma_{\phi}^{\bullet} \rightarrow 1$ , il faut de nombreux changements de fréquence pour que la phase diffuse ; c'est donc le comportement à long terme qui intervient (q $\tau \rightarrow 1$ ) et on se trouve dans la limite irréversible. La diffusion de la phase s'écrit :  $\sigma_{\phi}^{2}(\tau) = S_{\phi}^{\bullet}(0)\tau$  L'équation (I.18) s'intègre exactement :

$$S_{E}(\Omega) = \frac{2\omega_{d}}{\Omega^{2} + \omega_{d}^{2}} * \frac{E_{o}^{2}}{4} \left[\delta(\Omega - \bar{\omega}) + \delta(\Omega + \bar{\omega})\right]$$
(I.20)

Le spectre du champ de la source a une forme lorentzienne dont la mi largeur à mi hauteur vaut  $\omega_d = S_{\phi}^{\bullet}(0)/2$ . D'après la définition du temps  $\tau_d$  caractéristique de la diffusion de phase, la largeur du spectre est alors inversement proportionnelle à  $\tau_d$  et on a :

D'après les résultats donnés dans le tableau I-1,  $S_{\phi}^{\bullet}(0)$  est directement relié à  $\sigma_{\phi}^2/q$ . On observe donc que pour une valeur donnée de  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$ , plus les fluctuations de fréquence sont rapides, plus le spectre du champ a une largeur faible : la pureté spectrale de la source tend à être absolue pour les valeurs de q très grandes.

### I.1.3.4) Résultats généraux - Commentaires

Les résultats que nous avons établis montrent que lorsqu'on fait varier continûment le rapport q/ $\sigma_{\phi}^{\bullet}$ , la forme du spectre du champ électromagnétique d'une source change continûment d'une gaussienne à une lorentzienne.

Pour les limites réversible et irréversible, nous avons su donner analytiquement la forme exacte (gaussienne et lorentzienne) du spectre du champ et en déterminer sa mi largeur à mi hauteur. Pour les valeurs intermédiaires de  $q/\sigma_{\phi}^{\bullet}$ , le spectre du champ ne possède pas d'expression entièrement analytique. Seul un calcul numérique a permis de tracer pour différentes valeurs du rapport  $q/\sigma_{\phi}^{\bullet}$  le spectre du champ électromagnétique de la source. La figure I-4 représente les formes théoriques du spectre du champ électromagnétique dans le cas d'un spectre de bruit de fréquence lorentzien. Les courbes ont été tracées en fonction de  $(\Omega - \tilde{\omega})/\omega_d$  ( $\tilde{\omega}$  étant la fréquence centrale et  $\omega_d$  la mi largeur à mi hauteur du spectre du champ) pour différentes valeurs de  $q/\sigma_{\phi}^{\bullet}$ .



On remarque la forme gaussienne du spectre du champ pour  $q/\sigma_{\phi}^{*} = 0,01$  (limite réversible) et la forme lorentzienne pour  $q/\sigma_{\phi}^{*} = 14$ (limite irréversible). La figure I-4 montre que pour différentes valeurs de  $q/\sigma_{\phi}^{*}$ , le spectre du champ électromagnétique de la source a la même mi largeur à mi hauteur. Ainsi deux sources différentes peuvent avoir la même largeur de spectre  $\omega_{d}$  pour des valeurs différentes de couple  $(\sigma_{\phi}^{*},q)$ . La caractérisation d'une source par sa mi largeur à mi hauteur (donnée par  $S_{E}(\Omega)$ ) n'est pas suffisante : une source doit être caractérisée par les deux paramètres  $\sigma_{\phi}^{*}$  et q donnés par le spectre de bruit de fre quence  $S_{\phi}^{*}(\Omega)$ . Ce résultat montre que seul le spectre  $S_{\phi}^{*}(\Omega)$  contient toutes les informations nécessaires pour caractériser complètement une source.

La figure I-5 représente les couples possibles  $(\sigma_{\phi}^{\bullet},q)$  donnant une mi largeur à mi hauteur  $\omega_d$  fixée. Cette courbe tracée dans une représentation semi logarithmique, montre que des sources ayant la même largeur du spectre du champ électromagnétique peuvent avoir des valeurs différentes du couple  $(\sigma_{\phi}^{\bullet},q)$  et donc se révéler totalement différentes.

La figure I-6 représente les variations de la largeur du spectre  $S_{E}(\Omega)$  en fonction du rythme des changements de fréquence q pour une valeur moyenne quadratique des écarts de fréquence  $\sigma_{\phi}^{*}$  donnée. On retrouve les deux cas limites selon que  $q/\sigma_{\phi}^{*}$  est petit ou grand : - Dans la limite réversible  $(q/\sigma_{\phi}^{*} << 1)$ , la mi largeur à mi hauteur est directement relié à  $\sigma_{\phi}^{*}$ . La courbe représentant  $\omega_{d}/\sigma_{\phi}^{*}$  tend alors vers la droite asymptotique  $\sqrt{2\log 2}$ 

- Dans la limite irréversible  $(q/\sigma_{\phi}^{\bullet} \rightarrow 1)$ , la mi largeur  $\omega_{d}$  du spectre est inversement proportionnelle à q . Pour les grandes valeurs de q, la pureté spectrale tend à être absolue.

Pour les fluctuations de fréquence extrêmement rapides, la largeur du spectre diminue considérablement. Ce phénomène d'affinement du spectre du champ électromagnétique de la source intervient lorsque les changements de fréquence sont nombreux. Il est à rapprocher du phénomène de "rétrécissement par le mouvement" étudié par Dicke (19).

- 26 -







#### I - 2) DETERMINATION EXPERIMENTALE DU BRUIT DES SOURCES

Dans cette partie, nous allons rappeler brièvement quelques méthodes utilisées ordinairement pour caractériser le bruit des sources, puis nous présenterons la méthode qui a été retenue : elle permet en effet de déterminer le spectre du bruit de fréquence  $S^{\bullet}_{\Phi}(\Omega)$  d'une source, contenant toutes les informations pour caractériser avec précision le bruit de source.

#### I-2-1) Rappel de guelgues méthodes

Parmi les nombreuses méthodes de mesure disponibles pour évaluer la qualité d'une source, certaines utilisant un discriminateur de fréquence ou un analyseur de spectre sont plus adaptées au domaine spectral (détermination du spectre de bruit de fréquence  $S_{\Phi}^{\bullet}(\Omega)$  ou du spectre de rédiofréquence  $S_{E}(\Omega)$ ). D'autres, utilisant un compteur de fréquence sont plus adaptées au domaine temporel (détermination de variance d'Allan). Nous allons donner dans ce paragraphe un bref aperçu des techniques de mesure les plus classiques. D'autres méthodes (méthodes d'intercorrélation ...) sont développées dans des revues plus complètes (20).

### I.2.1.1) Méthode par comptage (20) (21)

Cette technique repose sur des comptages de la fréquence émise par la source à analyser et détermine la variance d'Allan. La mesure ne se fait pas directement sur le signal de sortie de la source (fréquences trop grandes) : une technique hétérodyne ou de battement avec une autre source de référence permet de transposer la fréquence à analyser dans une gamme compatible avec celle des compteurs commerciaux.

Si les fluctuations des deux sources sont décorrélées et ont des propriétés statistiques identiques, ce dont on n'est jamais sûr, alors la mesure des fluctuations de fréquence de battement est égale à celle des fluctuations de fréquence de chacune des deux sources à un facteur multiplicatif  $\sqrt{2}$  près. Nous indiquons les résultats de la détermination de la variance d'Allan pour quelques unes des sources les plus stables actuellement (22,3).Un laser à hélium-néon asservi à un pic d'absorption saturée de l'iode ( $\lambda$  = 0.633 µm,  $\nu$  = 474 THz) donne une stabilité de fréquence  $\sigma_a^2(2,\tau,\tau) \stackrel{1/2}{\simeq} 10^{-11}$  pour un temps de mesure de 1 seconde.

Un laser à hélium-néon asservi à un pic d'absorption saturée de méthane ( $\lambda$  = 3.39 µm, v = 88,4 THz) donne une stabilité de fréquence  $\sigma_{_{\rm a}}^2(2,\tau,\tau)^{-1/2}$  = 10<sup>-13</sup> pour un temps de mesure de 1 seconde.

Clayron et al. ont obtenu pour un laser à gaz carbonique CO<sub>2</sub> asservi à un pic d'absorption saturée de  $OsO_4$  (v=28 THz) une variance d'Allan de l'ordre de 5.10<sup>-14</sup>, pour une durée de comptage  $\tau$  = 10 s (23).

La stabilité s'améliore pour des temps d'abservation croissants ; la durée minimale est de l'ordre de la milliseconde.

Cette technique est évidemment bien adaptée au domaine temporel. L'inconvénient d'une telle méthode est le recours à un étalon de référence qui ramène du bruit supplémentaire.

### I.2.1.2) Analyseurs de spectre

Les analyseurs de spectre mesurent le spectre de radiofréquence  $S_{\rm E}(\Omega)$ . Il existe des analyseurs commerciaux fonctionnant de 100 Hz jusqu'à des fréquences de l'ordre de 40 GHz (24). Ces analyseurs de spectre travaillent par mélange du signal issu de la source à analyser avec celui issu d'un générateur étalon. La sensibilité obtenue par un analyseur de spectre Hewlett Packard 8555A travaillant à 40 GHz est de 2 Hz/ $\sqrt{\rm Hz}$  à 100 KHz de la porteuse.

L'inconvénient de ces analyseurs est que la qualité du générateur étalon peut devenir insuffisante dans le cas de sources de grande qualité et de plus le mélange peut ramener du bruit supplémentaire.

### I.2.1.3) Discriminateurs de bréquence

Un discriminateur de fréquence est un système qui transforme les fluctuations de fréquence d'une source en bruit d'amplitude. Par exemple en désaccordant légèrement un circuit résonant par rapport à la fréquence  $\bar{\omega}$  du signal E(t), les fluctuations de fréquence  $\phi(t)$  sont transformées en fluctuations d'amplitude du signal de sortie. Si les fluctuations d'amplitude e(t) de la source à analyser sont négligeables, alors les fluctuations d'amplitude du signal discriminé sont une bonne mesure des fluctuations de fréquence.

Ashley et al (25) obtiennent avec leur discriminateur de fréquence, pour une mesure du bruit de fréquence d'une source de 10 GHz, une sensibilité de l'ordre de 10<sup>-3</sup> Hz/ $\sqrt{\text{Hz}}$  à 100 KHz de la porteuse.

Rolland et al (26) utilisent pour mesurer le bruit de modulation de fréquence d'oscillateurs millimétriques libres ou synchronisés cette technique de discrimination de fréquence et effectuent, quant à eux, des mesures essentiellement près de la porteuse (1 Hz à 25 KHz).

Cette technique de discrimination de fréquence est bien adaptée pour avoir le spectre de bruit de fréquence  $S_{\Phi}^{\bullet}(\Omega)$ et a l'avantage de ne pas avoir recours à une source de référence. Ainsi nous avons retenu cette méthode pour analyser nos sources millimétriques et nous allons la développer dans le prochain paragraphe.

I-2-2) La méthode de discrimination de fréquence

1.2.2.1) Principe et intérêt de la méthode

La détermination de la densité spectrale de bruit de fréquence  $S_{\Phi}^{\bullet}(\Omega)$  a été obtenue à l'aide d'un résonateur microonde de type Pérot-Fabry (27) utilisé comme discriminateur de fréquence. Le résonateur est accordé de telle sorte que la fréquence microonde à analyser coincide avec la mi hauteur de la courbe de transmission : les fluctuations de fréquence sont alors converties en fluctuations d'amplitude du signal détecté ; il suffit d'en faire l'analyse spectrale pour en déduire le spectre de puissance  $S_{\Phi}^{\bullet}(\Omega)$ .

Cette technique de mesure présente un certain nombre d'avantages :

i) Cette méthode permet de mesurer le paramètre fondamental  $S_{\varphi}^{\bullet}(\Omega)$  qui contient toutes les informations nécessaires pour décrire la source à

- 31 -

analyser. Un compteur de fréquence ou un analyseur de spectre donnent des paramètres non complets comme la variance d'Allan ou le spectre de radiofréquence  $\rm S_{p}(\Omega)$ .

ii) Cette transposition de fréquence se fait indépendamment de la fréquence de la source à analyser. Les sources que nous analysons se trouvent dans des gammes de fréquence allant jusqu'à 115 GHz. Or il n'existe pas d'analyseurs commerciaux travaillant à cette fréquence. Notre résonateur peut travailler dans des gammes de fréquence allant de 50 GHz à 200 GHz.

iii) Cette méthode utilisant un discriminateur de fréquence n'a pas recours à un étalon de référence qui pourrait ramener du bruit supplémentaire. Cette méthode n'est donc pas liée à la qualité spectrale d'un étalon de référence.

iv) La sensibilité obtenue tout à fait suffisante pour nos expériences est très bonne. On l'a vérifiée auparavant en modulant de façon connue le klystron : elle est de l'ordre de 0,05 Hz/ $\sqrt{Hz}$  à 100 KHz de la porteuse à 115 GHz.

v) Avec cette technique, il n'est pas possible cependant d'observer le spectre du bruit de fréquence au voisinage de la porteuse avec une grande résolution, la bande. d'analyse du récepteur utilisé étant de 2,2 KHz. Toutefois la zone basse fréquence du spectre du bruit de fréquence ne joue pas un grand rôle dans notre étude ultérieure.

### 1.2.2.2) Dispositif experimental

La figure I-7 donne le schéma du dispositif expérimental de la mesure du bruit de fréquence.

L'onde millimétrique de la source à analyser est envoyée dans le résonateur dont la bande passante  $\Delta\Omega/2\pi$  est réglable entre 150 KHz et 1 MHz par ajustement du rayon de courbure du miroir cylindrique. Les fluctuations d'amplitude du signal de sortie du résonateur sont recueillies sur un détecteur quadratique (diode Schottky Varian).

Cette tension est alors amplifiée par un préamplificateur bas bruit disponible au laboratoire (préamplificateur A.D.E. de gain ≅ 27 dB




FIGURE 1.7 : Dispositif expérimental de mesure du bruit de fréquence.

33

et de largeur de bande 1 KHz - 170 MHz) et ensuite par un amplificateur de gain  $\cong$  50 dB.

La mesure du spectre de bruit de fréquence s'obtient par un analyseur de spectre. Ne disposant pas d'analyseur de spectre au laboratoire, nous avons utilisé un synthétiseur de fréquence (ADRET modèle 6100 B) dont le signal de sortie (de fréquence  $\Omega_0 \cong 6$  MHz) est modulé en amplitude par la tension de sortie de l'amplificateur à l'aide d'un modulateur basé sur la variation de résistance d'un transistor à effet de champ ; le taux de modulation est  $\gamma = 19\%$  Volt<sup>-1</sup>(\*).

Ce signal modulé en amplitude est ensuite balayé en fréquence autour de la fréquence d'accord d'un récepteur (Hammarlund SP 600) de bande d'analyse  $\Delta v = 2$ , 2 KHz. Le récepteur sensible à l'amplitude du signal, délivre un signal proportionnel à l'amplitude du spectre de bruit de fréquence  $S^{*}_{\phi}(\Omega)$ .

# I.2.2.3) Etude théorique de la chaine de mesure

Dans le cas d'une source idéale sans bruit, de fréquence fixe  $\bar{\omega}$ , la réponse du résonateur E(t) au signal d'entrée e(t) = e exp  $i\bar{\omega}t$ , s'écrit :

$$E(t) = E \exp i\omega t = e R(i\omega) \exp i\omega t$$

où : R( $i\omega$ ) =  $\frac{1}{1+i} \frac{(\bar{\omega}-\Omega)}{\Delta\Omega}$  est la fonction de transfert du résonateur ;

 $\Omega$  est sa fréquence propre et  $\Delta \Omega,$  sa bande passante.

Dans le cas d'une source réelle de fréquence  $\omega(t) = \bar{\omega} + \bar{\phi}(t)$ pour évaluer la réponse du résonateur, on définit une fonction de transfert généralisée (28) par la relation :

$$E(t) = G(i\omega,t) e(t)$$

- \_\_\_\_\_
- (\*) Une meilleure rejection de la porteuse à 6 MHz peut être obtenue en utilisant un modulateur en anneau : ce qui permet une meilleure analyse du spectre  $S_{\phi}(\Omega)$  pour les très basses fréquences qui toutefois ne jouent pas de rôle dans nos expériences.

En régime quasi stationnaire, c'est-à-dire lorsque le spectre du bruit de fréquence  $\phi(t)$  est étroit devant  $\Delta\Omega$ , ce qui se traduit par le fait que le temps caractéristique de réponse du résonateur  $1/\Delta\Omega$  est très court devant le temps de corrélation 1/q du bruit de fréquence, on peut montrer que (28) :

$$G(i\omega,t) \cong R(i\omega) + \frac{1}{2} \frac{d\phi}{dt} \frac{d^2 R(i\omega)}{d(i\omega)^2}$$

La grandeur R(i $\omega$ ) est la fonction de transfert quasi stationnaire du résonateur et s'obtient en remplaçant la fréquence fixe  $\bar{\omega}$  par la fréquence instantanée  $\omega(t) = \bar{\omega} + \dot{\phi}(t)$ .

Comme les termes en  $\dot{\phi}$  sont négligeables devant  $\Delta \Omega^2(*), l'équation précédente devient par un développement limité au premier ordre en <math>\dot{\phi}(t)/\bar{\omega}$ :

$$G(i\omega,t) = R(i\overline{\omega}) + i\phi \frac{dR(i\omega)}{d(i\omega)} = \omega$$

(\*) Cette approximation peut s'expliciter de la façon suivante : Comme  $S_{\phi}(\Omega) = \Omega^2 S_{\phi}(\Omega)$ , on a :

$$\langle \dot{\phi}^2 \rangle = \int_{-\infty}^{+\infty} \Omega^2 S_{\dot{\phi}}(\Omega) d\Omega$$

En prenant pour  $S_{\varphi}^{\bullet}(\Omega)$  le modèle exponentiel qui est le mieux adapté pour décrire le bruit de fréquence des klystrons utilisés, il vient :

$$\sqrt{\langle \dot{\phi}^2 \rangle} = 2 \sqrt{\pi} \sigma_{\dot{\phi}} q$$

L'approximation  $\sqrt{\langle \dot{\phi}^2 \rangle} = 2 \sqrt{\pi} \sigma_{\dot{\phi}} q \ll \Delta \Omega^2$  est justifiée avec les valeurs numériques données ultérieurement.

On peut noter que dans le cas du modèle lorentzien,  $\langle \dot{\phi}^2 \rangle$  diverge ; le modèle lorentzien n'est donc pas physiquement réaliste : en effet ce modèle à sauts de fréquence suppose des variations instantanées de  $\dot{\phi}$ .

- 35 -

Si le resonateur est accordé à mi hauteur ( $\bar{\omega} = \Omega + \Delta \Omega$ ), on obtient enfin :

$$G(i\omega,t) = \frac{1}{1-i} \left[ 1 - (1-i) \frac{\dot{\Phi}}{2\Delta\Omega} \right]$$

A la sortie d'un détecteur quadratique, on obtient une tension V(t) proportionnelle à E(t) . E\*(t), qui s'écrit au premier ordre en  $\stackrel{\bullet}{\varphi}$  :

$$V(t) = \frac{V_0}{2} (1 - \dot{\phi}/\Delta\Omega)$$

V est la tension détectée lorsque le résonateur est accordé exactement  $(\tilde{\omega} = \Omega)$ .

Les fluctuations de fréquence  $\phi(t)$  ont été bien transformées en modulation d'amplitude du signal détecté.

En amplifiant uniquement la composante alternative du signal discriminé V(t), on obtient une tension

$$v(t) = \frac{V_0 \Gamma}{2\Delta\Omega} \phi$$

qui ne dépend que des fluctuations de fréquence de la source à analyser.  $\Gamma$  représente le gain total des amplificateurs.

Pour procéder à l'analyse spectrale de cette tension v(t), on l'utilise pour moduler en amplitude le signal de sortie d'un synthétiseur de fréquence  $\Omega_{c}$  qui s'écrit alors :

$$v_{m}(t) = A_{0} \cos \Omega_{0} t \left[ 1 + \frac{\gamma \Gamma V_{0} \phi(t)}{2\Delta \Omega} \right]$$

où A  $_{\rm O}$  est l'amplitude du signal de sortie du synthétiseur et  $\gamma$  le taux de modulation.

En calculant d'abord la fonction d'autocorrélation de  $v_m(t)$  le spectre de puissance de l'onde modulée s'écrit alors :

$$S_{V_{m}}(\Omega) = \frac{A_{0}^{2}}{4} \left[ \delta(\Omega_{0} + \Omega) + \delta(\Omega_{0} - \Omega) + \delta(\Omega_{0} + \Omega) * \frac{\Gamma^{2} \gamma^{2} V_{0}^{2}}{4\Delta \Omega^{2}} S_{\phi}^{*}(\Omega) + \delta(\Omega_{0} - \Omega) * \frac{\Gamma^{2} \gamma^{2} V_{0}^{2}}{4\Delta \Omega^{2}} S_{\phi}^{*}(\Omega) \right]$$

$$(I-21)$$

Le spectre du bruit de fréquence  $S_{\varphi}^{\,\bullet}(\Omega)$  est donc centré sur les fréquences porteuses  $\Omega_{-}$  et  $-\Omega_{-}.$ 

En faisant varier la fréquence  $\Omega_0$  du synthétiseur, on décrira  $S_{V_m}(\Omega)$ . Le récepteur à bande étroite détectera une tension proportionnelle à l'amplitude de  $S_{V_m}(\Omega)$ , c'est-à-dire proportionnelle à  $\sqrt{S_{\phi}(\Omega)}$ , l'amplitude du spectre du bruit de fréquence de la source à analyser.

Connaissant alors la bande passante du résonateur, la valeur de la tension détectée lorsque le résonateur est accordé exactement, le gain total des amplificateurs et le taux de modulation du modulateur d'amplitude, on peut facilement calibrer l'enregistrement. On a également vérifié le calibrage de l'enregistrement en appliquant une modulation connue sur le klystron à tester.

#### I-2-3) Description des sources utilisées

### 1.2.3.1) Schéma de montage de la source

Les sources utilisées dans ce travail sont : - soit un klystron Varian (modèle VRB 2113) de la gamme 97-103 GHz ; sa puissance de sortie est de 100 mW.

- soit un klystron Varian (modèle VRT 2123) de la gamme 109-118 GHz ; sa puissance de sortie est de 150 mW.

Pour effectuer un contrôle précis de la fréquence des sources, celles-ci sont stabilisées en phase. Le schéma de montage est présenté sur la figure I-8.

On réalise sur un mélangeur Hitachi muni d'un cristal 1N53, un battement entre la fréquence du klystron source et celle d'un étalon ; l'étalon de fréquence utilisé est un générateur Férisol OS-401 (2-4 GHz) asservi en phase sur un quartz de fréquence voisine de 15 MHz (Microwave Systems, Modèle MOS-1).

A la sortie du mélangeur, on obtient une fréquence intermédiaire de l'ordre de 30 MHz et la phase de ce battement est alors comparée à la phase d'une référence de 10 MHz ; ceci est réalisé par un



BUS

FIGURE 1.8 : Dispositif de stabilisation des klystrons millimétriques



- 38 -

synchriminateur Schomandl F.D.S.30 muni d'un tiroir de sortie fabriqué à l'atelier d'électronique du laboratoire. Ce tiroir permet d'ajuster le gain et la bande passante de la boucle d'asservissement de phase.

Il est nécessaire maintenant de décrire en détail la boucle d'asservissement du synchriminateur, car elle permet de corriger les défauts du spectre du klystron et d'éliminer les dérives de fréquence.

# 1.2.3.2) Caractérisation d'une boucle à verrouillage de phase

La description d'une boucle à verrouillage de phase a été développée en détail par Gardner (29). Nous donnerons brièvement le principe, en insistant sur l'analogie formelle que nous avons établie entre l'équation de la boucle de stabilisation de phase et l'équation de Langevin.

La source microonde à stabiliser est reliée à une source de référence à l'aide d'un système d'asservissement (Schomandl F.D.S.30) comprenant un détecteur de phase et un filtre de fonction de transfert  $F(j\Omega)$  ou de réponse impulsionnelle f(t) (voir figure I-9)

Lorsque la source à stabiliser est libre, les fluctuations de fréquence (apportées essentiellement par l'alimentation de la source) sont  $\phi_{K}(t)$ . Une tension de correction V<sub>c</sub> est alors envoyée sur l'alimentation de la source entrainant une correction de la fréquence de telle sorte que les fluctuations de fréquence de la source stable deviennent (29), (30):

$$\phi(t) = \phi_{K}(t) + K_{\alpha} V_{\alpha}(t)$$
 (I.22)

K est la sensibilité d'accord de fréquence de la source et s'exprime en Hz/Volt.

La tension de correction V (t) est obtenue en comparant la phase  $\phi(t)$  avec celle de la source de référence  $\phi_R(t)$  : ceci est réalisé à l'aide d'un comparateur de phase de sensibilité Kd (en Volt/rd) dont la tension de sortie est :



FIGURE I-9 : Schéma d'une boucle à verrouillage de phase.

$$V_{d}(t) = K_{d} \left[ \phi(t) - \phi_{R}(t) \right]$$
 (I.23)

En filtrant le signal ainsi obtenu dans un filtre de réponse impulsionnelle f(t), on obtient la tension de correction qui s'écrit donc :

$$V_{c}(t) = K_{d} \left[ \phi(t) - \phi_{R}(t) \right] * f(t)$$
 (I.24)

En reportant (I.24) dans (I.22), on obtient l'équation générale de la stabilisation de phase :

$$\dot{\phi}(t) = \dot{\phi}_{K}(t) + K_{O}K_{O}f(t) * \left[\phi(t) - \phi_{R}(t)\right]$$
(I.25)



On peut remarquer que cette équation est assez analogue à l'équation de Langevin rencontrée dans le problème du mouvement brownien (12) ; en effet, en introduisant :

 $\psi(t)$  =  $\phi(t)$  -  $\phi_{\rm R}(t)$  qui représente l'écart de phase du système d'asservissement.

 $\chi(t) = \phi_{K}(t) - \phi_{R}(t)$  qui représente les perturbations apportées par la référence et par la source.

On peut réécrire (I.25) de la façon suivante :

$$\psi(t) - K_{0}K_{d}f(t) * \psi(t) = \chi(t)$$
 (I.25')

L'équation (I.25') est analogue à l'équation (I.9).

En suivant une démonstration similaire à celle développée au paragraphe I.2.2.b,, on obtient :

$$S_{\psi}(\Omega) = \frac{S_{\bullet}(\Omega)}{\Omega^{2} + |\kappa_{0}\kappa_{d}|^{2}} = \frac{S_{\bullet}(\Omega)}{\Omega^{2}} \qquad (I.26)$$

La phase  $\psi$  du système d'asservissement est donc stationnaire. La chaine d'asservissement a donc rendu la phase de la source stationnaire par rapport à celle de l'étalon, alors que les phases de la référence et de la source restent susceptibles de diffuser.

# 1.2.3.3) Fluctuations de fréquence d'une source stabilisée en phase

On peut calculer maintenant le spectre des fluctuations de fréquence de la source stabilisée en phase en fonction du spectre de bruit de la référence, du spectre de bruit de la source libre, et de la fonction de transfert de la chaine d'asservissement.

La démonstration rencontrée dans la littérature (Cuttler (31), Gardner (29)) pour calculer le spectre des fluctuations de fréquence d'une source stabilisée en phase, n'est pas satisfaisante, car elle suppose les phases de la source et de la référence stationnaires. Or dans notre modèle, ces phases sont susceptibles de diffuser ; ainsi notre méthode de calcul consistera dans un premier temps à calculer la contribution apportée par les fluctuations de fréquence de la référence, le bruit apporté par la source libre étant négligé. Puis dans un second temps nous calculerons la contribution apportée par les fluctuations de la source libre, le bruit apporté par la référence étant alors négligé.

Le système étant linéaire, les fluctuations  $\phi_K$  de la source et  $\dot{\phi}_R$  de la référence étant noncorrélées, le spectre des fluctuations de fréquence de la source stabilisée s'obtiendra en faisant la somme des deux contributions.

i) Si on considère seulement le bruit de la référence, l'équation générale de la stabilisation de phase (I.25) devient :

$$\phi(t) = K_{0}K_{d} f(t) * (\phi(t) - \phi_{R}(t))$$
(I.27)  
= K\_{0}K\_{d} f(t) \*  $\psi(t)$  (I.27')

En multipliant l'équation (I.27') par la même expression au temps t+t, en prenant les moyennes temporelles puis en prenant les transformées de Fourier, on obtient :

$$S_{\phi}^{\bullet}(\Omega) = |K_{0}K_{d}F(j\Omega)|^{2}S_{\psi}(\Omega)$$

Soit d'après (I.26), et compte tenu que  $S_{\chi}(\Omega) = S_{\varphi}(\Omega)$ , puisqu'on néglige le bruit de la source libre :

$$S_{\phi}^{\bullet}(\Omega) = \frac{\left|K_{O}K_{d}F(j\Omega)\right|^{2}}{\Omega^{2} + \left|K_{O}K_{d}F(j\Omega)\right|^{2}} S_{\phi_{R}}^{\bullet}(\Omega) \qquad (I.28)$$

11) Si l'on tient compte maintenant du bruit du klystron et si l'on néglige le bruit de référence, l'équation fondamentale devient :

$$\dot{\phi}(t) = \dot{\psi}(t)$$

D'après l'équation (I.26), il vient immédiatement :

$$S_{\phi}^{*}(\Omega) = \frac{\Omega^{2} S_{\phi K}^{*}(\Omega)}{\Omega^{2} + |K_{0}K_{d} F(j\Omega)|^{2}}$$
(I.29)

Le spectre total des fluctuations de fréquence de la source stabilisée s'écrit donc en combinant les équations (I.28) et (I.29) :

$$S_{\phi}^{*}(\Omega) = \frac{\Omega^{2} S_{\phi_{K}}^{*}(\Omega)}{\Omega^{2} + |\kappa_{0}\kappa_{d}|F(j\Omega)|^{2}} + \frac{|\kappa_{0}\kappa_{d}|F(j\Omega)|^{2} S_{\phi_{R}}^{*}(\Omega)}{\Omega^{2} + |\kappa_{0}\kappa_{d}|F(j\Omega)|^{2}}$$
(I.30)

On remarque d'après l'équation (I.30) que, aux basses fréquences  $(\Omega \rightarrow 0)$ le système d'asservissement de la phase a pour but de supprimer les fluctuations de fréquence de la source libre.

En introduisant la fonction de transfert de la chaine d'asservissement définie par (14):

$$|H(j\Omega)| = \begin{vmatrix} \frac{K_{a}K_{d} F(j\Omega)/j\Omega}{1+K_{a}K_{d} F(j\Omega)/j\Omega} \end{vmatrix}$$

l'équation (I.30) s'écrit alors :

$$s_{\phi}^{\bullet}(\Omega) = |1-H(j\Omega)|^{2} s_{\phi_{K}}^{\bullet}(\Omega) + |H(j\Omega)|^{2} s_{\phi_{R}}^{\bullet}(\Omega) \qquad (I.30')$$

Dans nos expériences, on réalise en fait sur un mélangeur un battement entre la fréquence (≅ 100 GHz) du klystron source avec un harmonique d'ordre N(=25) de la source de référence (générateur Férisol à 4 GHz).

Dans ce cas, le spectre de bruit de la référence devient :

$$S_{\phi_R}^{\bullet}(\Omega) = N^2 S_{\phi_R}^{1}(\Omega)$$

où  $S_{\Phi}^{\frac{1}{2}}(\Omega)$  est le spectre de bruit de fréquence du générateur Férisol.

La puissance de bruit de l'étalon de fréquence est donc multipliée par le carré du rang d'harmonique utilisé

#### 1.2.3.4) Discussion

L'équation (I.30') que nous venons d'établir, suscite quelques commentaires. Etant donnés les deux spectres de bruit S $\circ \ (\Omega) \ \phi_R \ \phi_R \ \phi_R$ 

il est nécessaire de choisir la fonction de transfert  $H(j\Omega)$  de telle sorte à minimiser le bruit de sortie  $S_{\bullet}(\Omega)$ .

Suivant la forme de la fonction  $H(j\Omega)$ , la chaine d'asservissement corrige le bruit de la source libre : en effet si la source est particulièrement bruyante et si la référence est stable, la bande passante de la boucle doit être la plus large possible afin d'éliminer le bruit apporté par la source.

Afin de connaître la fonction de transfert  $H(j\Omega)$ , il est nécessaire de préciser le filtre de boucle dont la fonction de transfert est  $F(j\Omega)$ .Un filtre fréquemment utilisé (29) est le filtre intégrateur avance (en anglais "lag lead filter"). Le schéma d'un tel filtre est représenté sur la figure I-10.



FIGURE I-10 : Filtre intégrateur avance de la boucle de verrouillage de phase. Les valeurs numériques des composants du filtre utilisés sont les suivantes :  $R_1 = 2000 \Omega$ , c = 25  $\mu$ F. Pour une résistance  $R_2 = 1 \Omega$  (respectivement 100  $\Omega$ ), la bande passante de la boucle vaut 85 KHz (respectivement 8,5 MHz). Nous allons voir que l'introduction supplémentaire de la résistance R<sub>2</sub> dans le filtre par rapport à un simple filtre RC a pour effet de rendre la bande passante de la chaine plus large.

Le synchriminateur Schomandl a un filtre intégrateur avance et sa fonction de transfert est donnée par :

$$F(j\Omega) = \frac{1 + j\Omega CR_2}{1 + j\Omega C(R_1 + R_2)}$$

la bande passante de la boucle obtenue en faisant  $|H(j\Omega)| = 1/\sqrt{2}$  est égale approximativement à  $\Omega_c \cong \frac{K_o K_o R_2}{R_1 + R_2}$  et elle est d'autant plus grande que la résistance  $R_2$  est grande.

Les valeurs numériques des composants du filtre utilisés sont données sur la figure I-10 et nous avons calculé la bande passante  $\Omega_c$  de la boucle pour deux valeurs différentes de la résistance R<sub>2</sub>.

Les sensibilités d'accord du klystron K  $_{\rm O}$  et du détecteur de phase K  $_{\rm d}$  sont respectivement 3 MHz/Volt et 10 Volts/Rd.

Pour une résistance R<sub>2</sub> = 1Ω (respectivement 100 Ω) nous trouvons alors une bande passante de la boucle  $\Omega_c$  = 85 KHz (respectivement 8,5 MHz).

Nous avons tracé sur la figure I-11 dans une représentation logarithmique  $|F(j\Omega)|$  et  $|H(j\Omega)|$  pour les deux valeurs de la résistance  $R_2$ . Cette figure montre donc que l'intérêt d'un tel système d'asservissement de phase est de supprimer les fluctuations lentes de la fréquence de la source libre et cela d'autant mieux que la bande passante de la boucle est large, c'est-à-dire pour des valeurs de la résistance  $R_2$  grandes.

FIGURE 1-11 : Représentation logarithmique des modules des fonctions de transfert du filtre  $|F(j\Omega)|$ deux valeurs de la résistance R<sub>2</sub> du filtre. Les courbes dessinées en trait gras (respectivement en trait fin) correspondent à  $R_2 = 1\Omega$  (respectivement 100  $\Omega$ ). (en pointillé) et de la boucle d'asservissement  $|H(j\Omega)|$  (en trait continu) pour 965. راريا



#### 1-2-4) Résultats expérimentaux

Nous présentons ici quelques exemples de mesure de spectres de bruit de fréquence des klystrons qui seront utilisés ultérieurement. La figure I-12a représente l'enregistrement de l'amplitude du spectre du bruit de fréquence  $S_{\phi}(\Omega)$  (obtenu avec une bande d'analyse de récepteur de 2,2 KHz) du klystron 115 GHz lorsque celui-ci est libre (c'està-dire lorsque la boucle de stabilisation de phase est ouverte). Nous avons réglé le miroir cylindrique du résonateur de telle sorte que la bande passante de ce dernier soit suffisamment grande afin d'observer  $S_{\phi}^{*}(\Omega)$ assez loin de la porteuse. Dans ces expériences,  $\Delta\Omega/2\pi$  est de l'ordre de 600 KHz.

La figure I-12b représente l'enregistrement de l'amplitude du spectre  $S_{\Phi}^{\bullet}(\Omega)$  (dans la même bande d'analyse) du même klystron, mais lorsque celui-ci est stabilisé en phase sur l'étalon Feriscl-MOS à l'aide du synchriminateur Schomandl.

La chaine d'asservissement a été ajustée pour avoir la bande passante optimale de sorte que la boucle de la chaine corrige les perturbations du klystron libre.

Le pic situé à 90 KHz de la porteuse est une perturbation qui provient du synthétiseur de fréquence Adret. En effet un enregistrement, qui a été réalisé auparavant sans hyperfréquence, présente ce pic.

Le grand pic à 350 KHz correspond par contre à une perturbation cohérente du système Fériscl-MOS.

On peut observer la réduction d'amplitude du bruit de fréquence aux basses fréquences (jusqu'à une fréquence de 150 KHz de la porteuse) du klystron lorsque celui-ci est stabilisé. L'intérêt de ce système d'asservissement est en fait de corriger les dérives basses fréquences du klystron libre. Par contre à partir de 150 KHz, la stabilisation de phase dégrade la cohérence du klystron. Cette dégradation aux plus hautes fréquences provient des imperfections de l'étalon. Ainsi même, si on



FIGURE I-12 : Enregistrements de l'amplitude du spectre de bruit de fréquence S, du klystron 115 GHz, obtenus avec une bande d'analyse du récepteur  $\Delta v = 2,2$  KHz, a : le klystron est libre, b : le klystron est stabilisé en phase sur l'étalon de fréquence Férisol MOS.

peut améliorer le résultat en ajustant la bande passante, il est ne saire de disposer d'un étalon de qualité suffisante si on veut garder les qualités spectrales du klystron libre.

La figure I-13 représente l'amplitude du spectre du bruit de fréquence (dans une bande d'analyse de 1 Hz) en fonction de la fréquence  $\Omega/2\pi$ , du klystron libre et asservi en phase. Les courbes sont tracées dans une représentation semi logarithmique : les points sont obtenus à partir du spectre expérimental (figure I-12) alors que les droites correspondent au modèle de spectre de bruit de fréquence exponentiel le plus voisin donné dans le tableau I-1 :

$$S_{\Phi}^{\bullet}(\Omega) = \sigma_{\Phi}^{2} \pi/q \exp(-|\Omega|/q)$$



FIGURE I-13 : Représentation semi logarithmique de l'amplitude du spectre de bruit de fréquence S;(f) du klystron 115 GHz libre (•) et verrouillé en phase (•). Les points sont obtenus à partir du spectre expérimental (fig. I-12). Les droites correspondent au modèle du spectre exponentiel le plus voisin. La figure I-13 montre qu'un modèle exponentiel de S $_{\Phi}^{\bullet}(\Omega)$  est bien adapté pour décrire la source à analyser. Les propriétés spectrales du klystron 115 GHz que nous avons analysé peuvent être résumées dans le tableau I-2 et comparées à celles des klystrons étudiés auparavant dans le laboratoire(5).

Klystron	Etalon de Fréquence	S•(0)/2π <sup>1/2</sup>	q/2π	1/q	σ;⁄2π	r <sub>d</sub>	<sup>ω</sup> d 2π
Varian 115 GHz 150 mW modèle VRT 2123	Férisol MOS	1,4 Hz/√Hz	360 KHz	0,45 µs	0,48 KHz	80 ms	0,98 Hz
	Non stabilisé	1,9 Hz/√Hz	180 KHz	0,9 µs	0,46 KHz	43 ms	1,85 Hz
Varian 102 GHz 100 mW modèle VRB 2113	Férisol MOS	9,5 Hz/√Hz	310 KHz	0,51 μs	3 KHz	1,8 ms	45 Hz
	CTI Adret	210 Hz/VH코	71 KHz	2,2 µs	32 KHz	5,9 µs	22 KHz

TABLEAU I-2 : Paramètres caractérisant le bruit de fréquence des klystronsutilisés verrouillés en phase ou libres. On a utilisé pourle spectre de bruit de fréquence  $S_{\Phi}^{*}(\Omega)$  un modèle exponentiel.

Le klystron 115 GHz stabilisé en phase sur l'étalon Férisol-MOS peut donc être considéré comme une source d'excellente pureté spectrale : la largeur du spectre du champ électromagnétique de cette source est de  $\omega_d$  = 1 Hz correspondant à un temps de diffusion de la phase  $\tau_d$  très long de 80 ms. La pureté spectrale du klystron 102 GHz stabilisé sur le même étalon, également très bonne ( $\omega_d$  = 45 Hz,  $\tau_d$  = 1,8 ms) est moins bonne que celle du klystron 115 GHz précédent. Cette différence notable peut provenir de ce que le klystron 102 GHz, très usagé, a subi régulièrement des arcs d'amorçage entre le réflecteur et la cavité.

Par contre, le klystron 102 GHz stabilisé sur l'étalon de fréquence constitué d'un synthétiseur (Adret modèle 6100) et d'une source à l'état solide (CTI) s'est révélé très médiocre : la largeur du spectre est de  $\omega_d$  = 22 KHz, correspondant à un temps de diffusion de la phase  $\tau_d$  très court de 5,9 µs.



- 51 -

Enfin, pour caractériser la stabilité de fréquence de ces klystrons, nous avons représenté sur la figure I-14 leur variance d'Allan. Ces variances, déterminées dans le tableau I-1 ont été calculées à partir des paramètres caractéristiques du bruit de fréquence donnés dans le tableau I-2.

#### CONCLUSION

Cette étude nous a permis de caractériser parfaitement les sources millimétriques que nous allons utiliser pour les expériences de spectroscopie à très haute résolution, dans les prochains chapitres. Ces sources peuvent donc être considérées comme idéales : en effet leurs largeurs spectrales sont inférieures à 100 Hz, et dans le cas le plus favorable (klystron 115 GHz), de l'ordre du Hertz, c'est-à-dire très inférieures aux largeurs des transitions d'absorption moléculaires étudiées (plusieurs KHz).

# CHAPITRE II

# INFLUENCE DU BRUIT DE FREQUENCE EN SPECTROSCOPIE RESOLUE DANS LE TEMPS

- EXPÉRIENCES DE PRÉCESSION OPTIQUE ET D'ÉCHOS DE PHOTONS -

#### INTRODUCTION

Les expériences d'échos de photons (32, 33, 34) analogues aux expériences d'échos de spins en résonance magnétique nucléaire (35,36) sont réalisées en excitant un ensemble de systèmes à deux niveaux d'énergie à l'aide d'impulsions électromagnétiques résonantes et intenses.

Un exemple d'écho de photons obtenu par la méthode de commutation Stark est représenté sur la figure II-1. Il a été réalisé sur la transition (J,  $|KM| = 1, 1 \rightarrow 2, 1$ ) du fluorure de méthyle CH<sub>2</sub>F à une longueur d'onde de 3 mm. Initialement à l'équilibre thermodynamique, le gaz de molécules est mis en résonance : à l'issue d'une impulsion  $\pi/2$ , toutes les polarisations microscopiques sont en phase et la polarisation macroscopique atteint sa valeur maximale. Ensuite, le gaz mis hors résonance évolue librement : c'est le phénomène de précession optique. La présence d'effets inhomogènes tels l'effet Doppler, entraîne que toutes les molécules n'ont pas la même fréquence d'émission : il en résulte un amortissement conduisant à une destruction de la polarisation macroscopique alors que la relaxation collisionnelle n'a pas encore rétabli l'équilibre thermodynamique. On applique une impulsion  $\pi$  de durée t<sub> $\pi$ </sub> à l'instant T, permettant d'inverser la phase des polarisations microscopiques ; le gaz mis de nouveau hors résonance, les polarisations microscopiques évoluent librement et se retrouvent en phase à l'instant 2T +  ${\rm t}_{\pi}$  : c'est le signal d'échos de photons dont l'amplitude, comparée à celle de l'impulsion  $\pi/2$  est caractéristique du temps de relaxation T<sub>2</sub>.

Des séquences plus complexes à trois impulsions ou plus ont été mises en oeuvre (séquences de Carr-Purcell (36)) et permettent de suivre ainsi l'évolution de la cohérence induite dans le gaz pendant des durées de plusieurs dizaines de microsecondes. Ces longues durées requises par les expériences d'échos de photons à plusieurs impulsions ont montré la nécessité d'une bonne stabilité de la fréquence du champ électromagnétique de la source (7). Un grand nombre de travaux se sont



- 54 -

8115

intéressés aux effets de la pureté spectrale du champ électromagnétique d'une source en interaction avec un ensemble de systèmes à deux niveaux d'énergie. La plupart de ces travaux ont axé leur étude au cas des régimes stationnaires où seul le comportement à long terme des fluctuations de fréquence de source est à prendre en considération, puisque le couplage entre le gaz et rayonnement est très long.

Quelques travaux  $(37, 4, 5)^*$  se sont intéréssés au cas des régimes transitoires pour lesquels l'approche est tout à fait différente, puisque le couplage entre le gaz et le rayonnement est très court (quelques dizaines de µs). Le comportement de la source à court terme devient dans ce cas prépondérant. Ainsi De Voe (38)et Mac Farlane (39) annoncent que pour atteindre la largeur naturelle  $1/T_2$  de la transition, il est nécessaire que le laser soit stable durant un temps égal à  $T_2$  dans le cas d'une expérience de précession optique, mais seulement devant les impulsions résonantes  $\pi/2$  et  $\pi$  dans le cas d'une expérience d'échos de photons : ces prévisions sont en accord avec deux expériences faites sur des échantillons solides (38, 39).

Dans le cas des expériences sur des échantillons gazeux, les signaux obtenus sont très faibles et il est donc indispensable de faire la moyenne d'un grand nombre d'observations. De l'une à l'autre, la phase du signal observé présente des fluctuations dont il faut faire la moyenne statistique. Il en résulte un amortissement supplémentaire des signaux dont l'étude nécessite une description détaillée des comportements à court et à long termes de la source. Ainsi des sources, ayant des propriétés analogues en régime stationnaire, peuvent se révéler différentes en régime transitoire selon leur comportement à court ou à long terme.

Dans une première partie, nous écrirons les équations de Bloch Maxwell en incluant les fluctuations de fréquence ; nous utiliserons le modèle du bruit de fréquence à diffusion de phase présenté dans le premier chapitre. Ces équations seront alors résolues pour la précession optique et pour les échos de photons ; on précisera dans quelles conditions on pourra négliger le bruit de fréquence pendant la durée des

\* Au cours de la rédaction de ce mémoire, un article (62) relatif à cette étude a été publié. Les résultats sont analogues à ceux présentés dans ce chapitre, mais notre présentation semble plus générale puisque nous avons traité le cas d'un spectre de bruit de fréquence quelconque. impulsions de nutation. Dans une seconde partie, le dispositif expérimental sera décrit : au lieu de moduler directement la fréquence de la source, nous modulerons la fréquence des molécules par effet Stark, avec un bruit parfaitement défini dans le souci de contrôler systématiquement les effets du bruit de fréquence. Dans une troisième partie nous donnerons les résultats expérimentaux et nous montrerons l'avantage des expériences de régimes transitoires en présence de bruit. Pour conclure, des rapprochements avec d'autres processus de diffusion (liés au changement soit de la position, soit de la vitesse des molécules) seront présentés dans une dernière partie.

#### II - 1) PRESENTATION THEORIQUE

# II-1-1) Equations de Bloch Maxwell en présence d'un bruit de

#### fréquence

Nous considérons une onde plane polarisée rectilignement selon la direction x'Ox et se propageant dans la direction z'Oz à travers un gaz de systèmes à deux niveaux d'énergie, d'élément de matrice de moment dipolaire  $\mu$  et de pulsation propre  $\omega_0$ . Le gaz de molécules, irradié continûment par le rayonnement cohérent issu de la source est mis en ou hors résonance en utilisant le déplacement, sous l'effet d'un champ électrique statique, de la fréquence de résonance de la transition observée.

Pour décrire le signal de la source, nous utilisons le modèle du champ à diffusion de phase présenté dans le premier chapitre ; nous rappelons brièvement que dans ce modèle, les fluctuations d'amplitude du champ de la source sont négligeables, que le bruit de fréquence  $\dot{\phi}(t)$ est un processus aléatoire centré, gaussien et stationnaire du second ordre, complètement caractérisé par son spectre de puissance  $S^{\bullet}_{\phi}(\Omega)$  ou par sa fonction d'autocorrélation  $R^{\bullet}_{\phi}(\tau)$ , alors que la phase  $\phi(t)$  est susceptible de diffuser. Nous écrirons dans ce chapitre, le champ électrique et la polarisation électrique induite du gaz dans le référentiel tournant à la fréquence instantanée  $\omega + \dot{\phi}(t)$ , (\*) :

$$E(z,t) = Re \begin{bmatrix} \hat{E}(z,t) & exp & i \left[ \omega t - kz + \phi(t) \right] \end{bmatrix}$$
(II-1)  

$$P(z,t) = Re \begin{bmatrix} \hat{P}(z,t) & exp & i \left[ \omega t - kz + \phi(t) \right] \end{bmatrix}$$
(II-2)

Les expériences décrites dans ce chapitre sont relatives à l'interaction d'un gaz de molécules avec un rayonnement électromagnétique présentant un bruit de fréquence. Ainsi pour faire apparaître clairement les effets liés au bruit de fréquence et pour faciliter les calculs, les approximations suivantes peuvent être faites :

Nous ne traitons le rôle du champ électromagnétique que dans un modèle d'onde plane ; dans ce cas on ne prend pas en compte la distribution réelle du champ électromagnétique : ce qui revient à négliger un effet de temps de transit.

Bordé (40) a étudié cet effet en spectroscopie d'absorption saturée ; Glorieux (41) a décrit des expériences de transitoires en prenant en compte la distribution réelle du champ microonde et Rohart (7) a montré que dans ce cas, cet effet a un temps caractéristique égal à  $2b/\pi v_0$ , où b est la largeur de la cellule et  $v_0$  la vitesse la plus probable. Dans nos expériences, la largeur de la cellule étant de b = 4 cm, le temps caractéristique est de 70 µs, très long devant les plus longues durées des expériences (20 µs) : l'approximation du modèle d'onde plane est donc justifiée.

- Nous supposons le milieu optiquement fin : cela consiste à considérer que le champ auquel les molécules sont soumises est pratiquement égal au champ excitateur E<sub>0</sub>, en l'absence de gaz : la réaction du milieu sur le rayonnement étant alors faible, les systèmes quantiques ne sont donc pas couplés les uns aux autres ("solution à un atome").

(\*)Dans un souci de simplifier les notations; la fréquence angulaire moyenne  $\bar{\omega}$  s'écrira dans la suite  $\omega$ .

- 57 -

 Nous négligeons le temps de transit l/c de l'onde dans la cellule de longueur l.

Ensuite nous pouvons appliquer l'approximation de l'amplitude variant lentemant (42): en effet É(z,t), P(z,t),  $\phi(t)$  varient lentement dans le temps (respectivement dans l'espace) à l'échelle de la période du rayonnement T =  $2\pi/\omega$  (respectivement la longueur d'onde  $\lambda = c/\omega$ ). Compte tenu de l'approximation des ondes tournantes qui revient à négliger les termes qui évoluent à la fréquence  $2\omega$ , les équations de Bloch-Maxwell deviennent alors pour les molécules de vitesse axiale  $v_z$ :

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\frac{iE_0}{2\hbar} \left( \tilde{P} - \tilde{P}^* \right) - (n - n_0)/T_1 \qquad (II-3)$$

$$\frac{\partial P}{\partial t} = -\frac{i\mu^2 E_n}{h} + i(\omega_0 - \omega + kv_z - \dot{\phi}(t)) P - \dot{P}/T_2 \qquad (II-4)$$

$$\left| \mathsf{E}(\mathfrak{k}, \mathsf{t}) \right|^{2} = \mathsf{E}_{0}^{2} - \frac{\mathrm{i}\omega\mathfrak{k}}{2\varepsilon_{0}c} \left( \overset{\circ}{\mathsf{P}} - \overset{\circ}{\mathsf{P}}^{*} \right) \mathsf{E}_{0} \tag{II-5}$$

- n est la différence de populations par unité de volume ; n<sub>o</sub> est sa valeur à l'équilibre thermodynamique - T<sub>1</sub> (T<sub>2</sub>) est le temps de relaxation des populations (cohérences) -  $|E(l,t)|^2$  est proportionnel au signal délivré par un détecteur quadratique placé en bout de cellule

Nous allons chercher les solutions de ces équations pour la précession optique et pour les échos de photons ; nous verrons alors comment sont affectés ces signaux par le bruit de fréquence de la source selon qu'on regarde les comportements à court terme (limite réversible) ou à long terme (limite irréversible) de la polarisation du gaz.

#### II-1-2) Solutions des équations de Bloch Maxwell

Avant de résoudre les équations de Bloch Maxwell dans le cas d'une expérience d'échos de photons à un nombre quelconque d'impulsions correspondant à une séquence de Carr-Purcell (36)(voir figure II-2),



FIGURE 11-2 : Séquence d'impulsions Stark utilisée pour l'observation d'échos de photons à plusieurs impulsions. les durẽes des impulsions t<sub>π/2</sub> et t<sub>π</sub> considérées comme négligeables devant les temps de latence T et 2T, sont élangies par souci de visibilité.

nous étudierons de façon qualitative l'effet du bruit de fréquence sur les signaux de nutation résonante (impulsions  $\pi/2$  et  $\pi$ ); cette étude donnera les conditions pour lesquelles on pourra négliger le bruit de fréquence pendant les durées des impulsions de nutation, dans un souci de simplifier les calculs. Nous verrons si les approximations sont alors justifiées dans les expériences que nous présenterons.

## II.1.2.1) Nutation résonante

Très peu de travaux se sont intéréssés aux effets des fluctuations du champ d'une source sur les signaux de nutation. Mostowski et al (43) discutent des effets des fluctuations de phase et d'amplitude sur les oscillations de Rabi d'un système à deux niveaux : ils prédisent un amortissement du signal et également un déplacement significatif de la fréquence de Rabi, dans le cas d'une source présentant des fluctuations d'amplitude importantes.

Nous n'avons pu résoudre rigoureusement les équations différentielles stochastiques non linéaires de Bloch Maxwell avec notre modèle de bruit de fréquence, mais nous avons pu établir des résultats phénoménologiques : en effet, dans ce travail, l'étude est limitée à un bruit de fréquence  $\dot{\phi}(t)$  dont le temps de corrélation 1/q est long devant la durée du signal de nutation (impulsions  $\pi/2$  et  $\pi$ ), ce qui correspond alors à la limite réversible. Dans ce cas, la fréquence aléatoire  $\dot{\phi}(t)$ caractérisée par sa densité de probabilité gaussienne, de valeur quadratique moyenne  $\sigma_{\dot{\phi}}$  est une constante durant les impulsions  $\pi/2$  et  $\pi$ , et en effectuant la moyenne d'un grand nombre d'observations, l'amortissement dû au bruit de fréquence est de même nature que celui dû à l'effet inhomogène Doppler : en effet, l'amortissement dû à l'effet Doppler est obtenu en moyennant sur toutes les vitesses des molécules distribuées de façon gaussienne et de vitesse quadratique moyenne v<sub>o</sub>.

Du fait de cette analogie, nous pouvons utiliser les résultats de Glorieux (41) obtenus lors d'une étude théorique de la nutation optique en présence d'un effet Doppler. Glorieux trouve que lorsque la largeur par saturation  $\omega_1/2\pi$  est grande devant l'élargissement Doppler  $\Delta \omega_{D}^{2\pi}$ , les signaux de nutation ne sont pas affectés par l'effet inhomogène. Par contre, dès que l'élargissement Doppler devient plus grand que la largeur par saturation, on observe une diminution de l'amplitude du signal de nutation et un brouillage rapide des oscillations de Rabi. Des expériences de nutation optique en présence de bruit de fréquence ont montré des résultats analogues : pour des valeurs de l'amplitude du bruit de fréquence  $\sigma_{\phi}^{*}/2\pi$  inférieures à la largeur par saturation  $\omega_{1}^{*}/2\pi$ , les signaux de nutation ne sont pas affectés par le bruit de fréquence de fréquence. Par contre dès que  $\sigma_{\phi}^{*}/2\pi$  est supérieur à  $\omega_{1}^{*}/2\pi$ , on observe une diminution de l'amplitude du signal de nutation.

Sur la figure II-3, nous avons représenté la réduction de l'amplitude de l'impulsion  $\pi/2$  en fonction de la valeur quadratique moyenne des écarts de fréquence  $\sigma_{\phi}^*/2\pi$ . Les barres ont été obtenues par les mesures expérimentales dans le cas de la limite réversible et pour une largeur par saturation  $\omega_1/2\pi \cong 500$  KHz. Par comparaison, nous avons tracé la courbe (continue) obtenue à partir d'un calcul numérique effectué par Glorieux lors de son étude de la nutation en présence d'un effet Doppler. La correspondance entre nos mesures et la courbe théorique confirme la similitude des deux effets sur la nutation.

Remarquons que cette étude où l'on fait varier la valeur quadratique moyenne  $\sigma_{\phi}^{*/2\pi}$  dans le cas de la limite réversible, peut très bien servir de modèle pour une étude en fonction de l'effet Doppler, compte tenu de la difficulté d'effectuer des expériences à effet Doppler variable.

Nous allons examiner maintenant les équations de Bloch-Maxwell afin de préciser les conditions pour lesquelles les signaux de nutation ne sont pas affectés par le bruit de fréquence.

En l'absence de relaxation et en négligeant l'effet Doppler, les équations de Bloch-Maxwell, dans le cas d'une interaction parfaitement résonante, deviennent alors, en introduisant la pulsation de Rabi $\omega_1 = \mu E_0/\pi$ :

- 61 -



FIGURE II-3 : Réduction de l'amplitude de l'impulsion  $\pi/2$  en fonction de la valeur quadratique moyenne  $\sigma_{\phi}$  des écarts de fréquence. Les barres ont été obtenues expérimentalement dans le cas de la limite réversible  $(1/q = 3,5 \ \mu s)$  et d'une largeur par saturation  $\omega_1/2\pi \cong 0,5$  MHz. La courbe continue a été obtenue à partir d'un calcul numérique (voir texte).

$$\frac{\partial n}{\partial t} = -\frac{i\omega_1}{2\mu} \left( \dot{P} - \dot{P}^* \right)$$
 (II.3')

$$\frac{\partial}{\partial t} (\tilde{P} - \tilde{P}^*) = -2 i\omega_1 \mu n - i \dot{\phi} (\tilde{P} + \tilde{P}^*) \qquad (II.4')$$

$$\frac{\partial}{\partial t} \left( \overset{\circ}{P} + \overset{\circ}{P}^{*} \right) = -i \phi \left( \overset{\circ}{P} - \overset{\circ}{P}^{*} \right)$$
(II.4")

En dérivant (II.4') et en utilisant (II.3') et (II.4"), on obtient :

$$\frac{\partial^2}{\partial t^2} \left( \overset{\circ}{P} - \overset{\circ}{P}^* \right) = - \left( \overset{\circ}{P} - \overset{\circ}{P}^* \right) \left( \overset{\circ}{\omega_1^2} + \overset{\circ}{\phi^2} \right) - \mathbf{i} \overset{\circ}{\phi} \left( \overset{\circ}{P} + \overset{\circ}{P}^* \right)$$

Les termes en  $\overset{\bullet}{\varphi}$  seront négligeables devant ceux en  $\omega_1^2$  si on a la relation ci-dessous :

$$\sqrt{\langle \dot{\phi}^2 \rangle} \ll \omega_1^2$$

qui donne l'approximation suivante (cf. Chapitre I, § I.2.2.3) :

$$\sigma_{\phi} q \ll \omega_1^2$$

On distingue deux cas :

i) Lorsque  $q/\omega_1 \ll 1$ , le temps de corrélation 1/q est très long et la fréquence aléatoire  $\dot{\phi}(t)$  est alors stable (limite réversible) ; on obtient une pseudopulsation de Rabi  $\omega_1^2 + \dot{\phi}^2$ . On retrouve les résultats précédents à savoir : les signaux de nutation ne sont pas affectés par le bruit de fréquence si  $\sigma_{\dot{m}}^* \ll \omega_1$ .

ii) Lorsque  $q/\omega_1 \gg 1$ , le temps de corrélation 1/q est très court et on est dans le limite irréversible. Il est donc nécessaire, pour que les signaux de nutation ne soient pas affectés par le bruit de fréquence, que l'on ait  $\sigma_{\phi}^{\bullet} \ll \omega_1^{\bullet}$ .

- 63 -

## II.1.2.2) Précession optique et échos de photons

Pour les signaux de précession optique et d'échos de photons, le gaz de molécules n'est plus couplé avec le rayonnement : la polarisation induite des molécules de vitesse v<sub>2</sub> évolue alors librement.

L'équation (II-4) devient :

$$\frac{\partial \tilde{P}}{\partial t} = i \left[ \omega_0 + kv_z - \omega - \phi(t) \right] \tilde{P} - \tilde{P}/T_2$$

et s'intègre exactement :

$$\begin{split} \widetilde{P}(v_{z},t) = \widetilde{P}(v_{z},t_{o}) \exp\left[i(\omega_{o}-\omega)(t-t_{o})\right] \exp\left[-(t-t_{o})/T_{2}\right] \exp\left[ikv_{z}(t-t_{o})\right] \\ \exp\left[-i(\phi(t)-\phi(t_{o}))\right] \end{split}$$

où  $\left[\phi(t)-\phi(t_0)\right]$  représente l'erreur de phase accumulée au cours de l'intervalle  $(t_0,t)$ .

P(v,t) est déterminé sachant que :

L'impulsion  $\pi/2$  crée une polarisation maximale ( $\overset{\circ}{P} = -i\mu n_{o}$ ), par contre les impulsions  $\pi$  transforment la polarisation  $\overset{\circ}{P}$  en son complexe conjugué  $\overset{\circ}{P}^*$ 

En intégrant sur la distribution gaussienne des vitesses v dont la vitesse la plus probable est v, et comme le signal en bout de cellule est proportionnel à  $1/i \left[ \tilde{P}(t) - \tilde{P}^*(t) \right]$  (équation (II.5)), nous obtenons : — pour la précession optique (0 < t < T) :  $1/i \left[ \tilde{P}(t) - \tilde{P}^*(t) \right] = -2\mu n_0 \exp(-t/T_2) \exp\left( -\frac{k^2 v_0^2 t^2}{4} \right) \cos\left[ (\omega_0 - \omega) t - \phi(t) + \phi(0) \right]$ 

(II-6a)

où :  $exp(-t/T_2)$  et  $exp(-\frac{e^2v_0^2t^2}{4})$  représentent respectivement les amortissements homogène dû aux collisions et inhomogène dû à l'effet Doppler.  $\phi(t) - \phi(0)$  représente l'erreur de phase accumulée au cours de l'intervalle (0,t). Nous posons  $\varphi(t) = \phi(t) - \phi(0)$ La polarisation apparaît comme un battement entre la fréquence du champ appliqué continûment et la fréquence propre des molécules. Le battement est affecté par le bruit de la source : sa fréquence instantanée est :  $\omega_{-} - \omega - \phi(t)$ .

- 64 -

- pour le premier écho (T < t < 3T), nous abtenons :

$$\frac{1}{i} \begin{bmatrix} \hat{\gamma}(t) - \hat{\gamma}^{*}(t) \end{bmatrix} = 2\mu n_{0} \exp(-t/T_{2}) \exp\left[-\frac{k^{2}v_{0}^{2}}{4} (t-2T)^{2}\right]$$

$$\times \cos\left[(\omega_{0} - \omega)(t-2T) - \phi(t) + 2\phi(T) - \phi(0)\right] \qquad (II.6b)$$

On remarque, qu'à l'instant de l'écho t=2T, il se reconstruit un signal non affecté par l'effet Doppler inhomogène. Une expérience d'écho de photons permet donc une remise en phase correcte de la polarisation par compensation de l'effet inhomogène.

 $(t)-2\phi(T)+\phi(0)$  représente l'erreur de phase accumulée au cours de l'intervalle (0,t). Nous poserons  $\varphi_1(t) = \phi(t) - 2\phi(T) + \phi(0)$ 

De façon générale, pour le Nième écho (2N-1)T < t < (2N+1)T, nous obtenons :

$$\frac{1}{i} \left[ \tilde{P}(t) - \tilde{P}^{*}(t) \right] = 2(-1)^{N+1} \mu n_{o} \exp(-t/T_{2}) \exp\left[ -\frac{k^{2}v_{o}^{2}}{4} (t-2NT)^{2} \right]$$

$$\times \cos\left[ (\omega_{o} - \omega)(t-2NT) - \varphi_{N}(t) \right] \qquad (II.6c)$$

 $\varphi_{\rm N}^{}({\rm t=2NT})$  peut s'écrire suivant deux formes qui nous serviront par la suite :

• soit en repérant les phases  $\phi(2iT)(i = 1 \ge N)$ par rapport à la phase à l'instant t = 0  $(\phi(0))$ , c'est-à-dire :

$$\varphi_{N}(t=2NT) = \left\{ \phi(2NT) - 2\phi \left[ (2N-1)T \right] + 2\phi \left[ (2N-3)T \right] - \dots + (-1)^{N+1} \phi(0) \right\}$$

• soit en fonction des erreurs de phase accumulées entre deux impulsions successives, c'est-à-dire :

$$\begin{split} \varphi_{N}(t=2NT) &= \phi(T) - \phi(0) + \sum_{i=1}^{N-1} (-1)^{i} \left\{ \phi \left[ (2i+1)T \right] - \phi \left[ (2i-1)T \right] \right\} \\ &+ (-1)^{N} \left\{ \phi(2NT) - \phi \left[ (2N-1)T \right] \right\} \end{split}$$

- 65 -

D'après les équations (II.6), si l'on considère le cas d'une séquence unique, il n'y a pas d'amortissement supplémentaire, mais une fluctuation de la fréquence de battement (38, 39).

Dans le cas des expériences sur des échantillons gazeux, les signaux sont très faibles et il est nécessaire d'effectuer la moyenne d'un grand nombre de séquences.

En prenant donc la moyenne statistique d'un grand nombre de séquences, le terme cos  $((\omega_0 - \omega)(t - 2NT) - \varphi_N(t))$  devient alors, compte tenu du caractère gaussien de la variable aléatoire  $\varphi_N(t)$ :

$$\left(\cos\left[\left(\omega_{0}-\omega\right)\left(t-2NT\right)-\varphi_{N}(t)\right]\right) = \cos\left[\left(\omega_{0}-\omega\right)\left(t-2NT\right)\right]\exp\left[-\frac{1}{2}\left\langle\varphi_{N}^{2}(t)\right\rangle\right]$$

 $\langle \varphi_N^2(t) \rangle$  est en rapport avec la variance de l'erreur de phase accumulée qui a été définie dans le premier chapitre (§I-1-2-3).

 $Exp\left[-\frac{1}{2} \langle \varphi_N^2(t) \rangle \right] \text{ décrit l'amortissement supplémentaire résultant du bruit de fréquence de source dans le cas d'un moyennage. }$ 

Nous allons étudier dans le prochain paragraphe cet amortissement en nous servant des définitions introduites dans le premier chapitre ; nous décrirons de façon détaillée les comportements à court et à long termes du bruit de fréquence.

# II-1-3) Etude de l'amortissement supplémentaire dû au bruit de fréquence

Nous allons utiliser deux méthodes pour calculer l'amortissement dû au bruit de fréquence. La première méthode utilisée par Rohart et Macke (5) consiste à calculer la variance de l'erreur de phase accumulée au cours de l'intervalle (0,t=2NT) en fonction des variances de la phase accumulée aux instants T, 2T, ... 2NT. Cette méthode permet de calculer exactement l'amortissement dans le cas d'une séquence d'échos de photons à un nombre quelconque d'impulsions et quelque soit le spectre de bruit de fréquence  $S_{\Phi}^{\bullet}(\Omega)$  (lorentzien, gaussien ou exponentiel) ; par cette méthode les calculs pour une séquence d'échos de

photons à plus de trois impulsions deviennent très fastidieux. Nous avons pu établir une méthode qui permet de déterminer de façon approchée l'amortissement pour une séquence d'échos de photons à N impulsions  $(N \rightarrow \infty)$ . Par cette méthode, nous déterminerons facilement l'amortissement du Nième écho dans le cas d'un spectre de bruit de fréquence  $S_{\phi}(\Omega)$ lorentzien. Nous présentons ces deux méthodes différentes qui apportent des informations complémentaires pour la description de l'amortissement du bruit de fréquence dans le cas d'une séquence d'échos de photons.

# II.1.3.1) Première méthode : calcul exact

Nous donnons les résultats uniquement pour la précession optique et les premier et second échos :

D'après l'équation (II.6a), la variance de l'erreur de phase pour la précession optique de durée de séquence t = T est :

$$\langle \varphi_0^2(t) \rangle = \langle \left[ \phi(t) - \phi(0) \right]^2 \rangle \qquad (II.7)$$

soit d'après l'équation (I.10') (§ I.1.2.3)

$$\langle \varphi_0^2(t) \rangle = \sigma_{\phi}^2(t)$$
 (II.7')

Pour le premier écho à l'instant t=2T, la variance de l'erreur de phase s'écrit d'après l'équation (II.6b) :

$$\langle \varphi_1^2(t=2T) \rangle = \langle \left[ \phi(2T) - 2\phi(T) + \phi(0) \right]^2 \rangle$$

En repérant les phases  $\varphi(2T)$  et  $\varphi(T)$  par rapport à la phase à l'origine on obtient :

$$\langle \varphi_1^2(t=2T) \rangle = \langle \left\{ \left[ \phi(2T) - \phi(0) \right] - 2 \left[ \phi(T) - \phi(0) \right] \right\}^2 \rangle$$

Nous remarquons que cette expression est analogue à un coefficient multiplicatif près, à la variance d'Allan définie § I.1.2.3b. En suivant la même démonstration établie pour le calcul de la variance d'Allan, il vient alors :
$$\langle \varphi_1^2(t=2T) \rangle = 4\sigma_{\varphi}^2(T) - \sigma_{\varphi}^2(2T)$$
 (II.8)

$$= 2\omega^{2}T^{2} < \sigma_{a}^{2}(2,T,T) >$$
 (II.8')

La variance de l'erreur de phase accumulée à l'instant du premier écho est donc égale à un facteur  $(2\omega^2 T^2)$  près à la variance d'Allan. Ce résultat était prévisible : en effet comme la séquence de mesure de la variance d'Allan, la variance de l'erreur de phase accumulée à l'instant du premier écho est définie également à partir d'un ensemble de deux échantillons de  $\dot{\phi}(t)$  mesuré sur des intervalles de même durée T et sans temps mort (puisqu'on néglige la durée de l'impulsion  $\pi$ ). Le premier échantillon est pris lors de la précession optique durant l'intervalle (0,T), la prise du second échantillon commence de la fin de l'impulsion  $\pi$ jusqu'à l'instant du premier écho (T,2T). Ainsi dans des expériences d'écho de photons, les molécules peuvent donc servir de "compteurs" pour déterminer la variance d'Allan à très court terme.

Enfin, la variance de l'erreur de phase pour le second écho à l'instant t = 4T est, en suivant une démonstration analogue à la précédente :

$$\langle \varphi_2^2(t=4T) \rangle = \langle \left[ \phi(4T) - 2\phi(3T) + 2\phi(T) - \phi(0) \right]^2 \rangle$$

ce qui donne après calcul :

$$\langle \varphi_2^2(t=4T) \rangle = \sigma_{\phi}^2(4T) - 4\sigma_{\phi}^2(3T) + 4\sigma_{\phi}^2(2T) + 4\sigma_{\phi}^2(T)$$
 (II.9)

## II.1.3.2) Commentaires - Prévisions théoriques

Nous avons vu dans le premier chapitre que la description de la variance de l'erreur de phase accumulée au cours de la durée t conduit à considérer deux comportements différents en fonction du nombre moyen de sauts de fréquence qt: le comportement à court terme (qt « 1) correspondant à la limite réversible et le comportement à long terme (qt » 1) à la limite irréversible. Nous allons analyser la variance de l'erreur de phase accumulée pour la précession optique et les premier et second échos. i) La limite irréversible intervient quand les changements de fréquence de la source sont très nombreux au cours de la séquence de durée t (qt » 1), c'est-à-dire dans le cas d'une source très instable.
La variance de l'erreur de phase au cours de la durée t s'écrit alors :

$$\sigma_{\phi}^{2}(t) = S_{\phi}^{\bullet}(0)t = 2\omega_{d}t$$

D'après les équations (II.7), (II.8), (II.9), on a :

$$\langle \varphi_0^2(t) \rangle = \langle \varphi_1^2(t) \rangle = \langle \varphi_2^2(t) \rangle = 2\omega_d t$$
 (II.10)

pour une même durée de la séquence t.

Il en résulte que la précession optique et les échos sont atténués de la même façon ( $\sim \exp(-\omega_d t)$ ) pour la même durée de la séquence t (où  $\omega_d$  est la largeur du spectre du champ électromagnétique de la source). Les changements de fréquence sont si nombreux qu'en aucun cas, on peut obtenir une remise en phase à l'instant des échos. On peut remarquer que l'amortissement dû au bruit de fréquence joue le même rôle que l'amortissement collisionnel : il détruit de façon irréversible la cohérence. La constante d'amortissement est alors :  $\omega_d + \frac{1}{T_2}$ . On remarque que cette limite correspond au régime stationnaire : en effet dans ces expériences, la largeur de la raie est :  $(\frac{1}{T_2} + \omega_d)$ .

 ii) La limite réversible intervient lorsqu'il y a peu de sauts de fréquence durant la séquence de durée t (qt « 1), c'est-à-dire lorsque la fréquence de la source effectue des fluctuations lentes. La variance de l'erreur de phase accumulée au cours de la durée t est alors :

$$\sigma_{\phi}^{2}(t) = \sigma_{\phi}^{2}t^{2}$$

- Dans le cas d'une précession optique de durée t, le signal présente donc un amortissement supplémentaire en  $\exp(-\frac{\sigma_{\phi}^2 t^2}{2})$  directement relié à la valeur quadratique moyenne des écarts de fréquence  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$ . Ce résultat était prévisible : en effet comme le temps de corrélation de la fréquence 1/q est très long devant la durée de la précession optique,  $\phi(t)$  reste constant; en faisant ensuite un moyennage sur un grand nombre d'observations,  $\phi(t)$  étant caractérisé par une distribution gaussienne des écarts de fréquence de valeur quadratique moyenne  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$ , il est normal d'avoir un amortissement en  $\exp(-\sigma_{\phi}^2 t^2/2)$ . Cet amortissement quadratique en temps est de même nature que l'amortissement dû à l'effet Doppler (cf. l'étude sur la nutation §II.1.2.1) qui s'obtient en faisant un moyennage sur toutes les vitesses v distribuées de façon gaussienne avec v<sub>o</sub>, la vitesse la plus probable.

Glorieux (41) lors d'une étude de la précession optique en présence d'effet Doppler, a vérifié que l'amortissement est en

 $\exp\left(-\frac{k^2 v_0^2}{4} t^2\right) \text{ pour les valeurs de la largeur par saturation grandes devant la largeur Doppler. Par analogie, l'amortissement dû au bruit de fréquence en <math>\exp(-\sigma_{\phi}^2 t^2/2)$  sur la précession optique est valable pour les valeurs de la largeur par saturation grandes devant la valeur quadratique moyenne  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$ .

 Aux instants des premier et second échos (t=2T, t=4T), les variances de l'erreur de phase donnent au même ordre d'approximation, d'après les équations (II.8) et (II.9) :

$$\langle \varphi_1^2(t=2T) \rangle = \langle \varphi_2^2(t=4T) \rangle = 0$$
 (II.11)

Il y a donc une remise en phase correcte des signaux à l'instant de chaque écho ; c'est un comportement caractéristique de la limite réversible : il y a donc une amélioration par rapport à la précession optique qui est affectée par le bruit de fréquence.

Lorsque qt croît, on note un amortissement de l'amplitude des échos qui dépend du spectre du bruit de fréquence  $S_{\phi}(\Omega)$ . La détermination de cet amortissement requiert un calcul exact de la variance de l'erreur de phase  $\sigma_{\phi}^2(t)$ ; la forme exacte de la variance de la phase  $\sigma_{\phi}^2(t)$  a été donnée dans le tableau I-1 du premier chapitre, pour les trois spectres de bruit de fréquence  $S_{\phi}(\Omega)$ ; les équations II.8 et II.9 donnent alors respectivement pour les premier et second échos pour chacun des trois spectres du bruit de fréquence  $S_{\phi}(\Omega)$ , les différentes lois asymptotiques regroupées dans le tableau II-1 ci-dessous .

Spectre	Lorentzien	Gaussien	Exponentiel
<\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\\	$\sigma_{\phi}^2 qt^3/6$	σ <sup>2</sup> •q <sup>2</sup> t <sup>4</sup> /16	$\sigma_{\phi}^2 q^2 t^4 / 8$
$\langle \varphi_2^2[t=4T] \rangle$	$\sigma_{\phi}^2 qt^3/24$	30 <sup>2</sup> q <sup>4</sup> t <sup>6</sup> /1024	30 <sup>2</sup> ₄ <sup>4</sup> t <sup>6</sup> ∕128

TABLEAU II-1

Les résultats concernant l'amortissement du premier et second échos dans la limite réversible méritent quelques commentaires. Pour une séquence de même durée t, les effets dus au bruit de fréquence sont plus faibles sur le second écho que sur le premier ; c'est une loi générale des séquences à impulsions multiples : Carr et Purcell (36) ont utilisé des séquences avec un grand nombre d'impulsions pour réduire les effets des processus de diffusion moléculaire.

On remarque que la même dépendance en t<sup>3</sup> est obtenue pour  $\langle \varphi_1^2(2T) \rangle$  et pour  $\langle \varphi_2^2(4T) \rangle$  avec un spectre lorentzien ; seuls les coefficients sont différents. Par contre dans le cas des spectres gaussien et exponentiel, nous obtenons pour le premier écho une loi en t<sup>4</sup>. Cette loi devient en t<sup>6</sup> pour le second écho. Le second écho est moins affecté par le bruit de fréquence que le premier.

Ces lois asymptotiques différentes selon le spectre illustrent l'importance capitale de la forme du spectre sur le comportement réversible des systèmes.

# II.1.3.3) Cas d'une séquence de Carr-Purcell : calcul approché

Pour déterminer la variance de l'erreur de phase  $\langle \varphi_N^2(t=2NT) \rangle$  du N<sup>ième</sup> écho, nous utilisons une séquence de type Carr-Purcell, de durée t et avec N impulsions  $\pi$ ; le nombre de changements de fréquence

qt au cours de la durée totale de la séquence est tout à fait quelconque (qt « 1 ou qt » 1). Par contre, le nombre N d'impulsions  $\pi$  étant très grand au cours de la durée t (N  $\rightarrow \infty$ ), on considère que le nombre de changements de fréquence entre 2 impulsions  $\pi$  et a fortiori au cours des impulsions est très faible, on a donc qT « 1 (limite réversible).

L'erreur de phase accumulée à l'instant du N<sup>ième</sup> écho (t = 2NT) peut s'écrire en fonction des erreurs de phase entre deux impulsions successives (éq. II.6c) :

$$\varphi_{N}(t = 2NT) = \phi(T) - \phi(0) + \sum_{i=1}^{N-1} (-1)^{i} \left\{ \phi\left[ (2i+1)T \right] - \phi\left[ (2i-1)T \right] \right\}$$
$$+ (-1)^{N} \left\{ \phi\left[ 2NT \right] - \phi\left[ (2N-1)T \right] \right\}$$
(II.12)

ce qui s'écrit :

$$\varphi_{N}(t = 2NT) = \sum_{i=0}^{N} (-1)^{i} \alpha_{i}$$
 (II.12')

en posant :

$$\alpha_{i} = \int_{\phi(t)}^{\phi(t)} dt \quad \text{pour } i = 0$$

$$\alpha_{i} = \int_{(2i-1)T}^{0} \phi(t) dt \quad \text{pour } 1 \leq i < N$$

$$\alpha_{i} = \int_{(2N-1)T}^{2NT} \phi(t) dt \quad \text{pour } i = N$$

La valeur quadratique moyenne de  $\varphi_{\underset{\ensuremath{\mathbb{N}}}{N}}$  s'écrit alors :

$$\langle \varphi_{N}^{2}(t=2NT) \rangle = \sum_{i=0}^{N} \langle \alpha_{i}^{2} \rangle + 2 \sum_{i=0}^{N} \sum_{j=i+1}^{N} \langle (-1)^{i+j} \langle \alpha_{i}, \alpha_{j} \rangle$$
(II.13)

Les termes du type  $\langle \alpha_i^2 \rangle$  font directement intervenir l'erreur de phase  $\sigma_\varphi^2(t)$  Par contre il reste à calculer les termes de la forme :

$$\langle \alpha_{i}, \alpha_{j} \rangle = \int_{t_{i}}^{t_{i}+\tau_{i}} \int_{j}^{t_{j}+\tau_{j}} \langle \dot{\phi}(\theta_{i}) \dot{\phi}(\theta_{j}) \rangle d\theta_{i} d\theta_{j}$$

$$t_{i} \qquad t_{j}$$

$$avec t_{i} \rangle t_{j} et i \neq j.$$

- 72 -

En introduisant la fonction d'autocorrélation, il vient :

$$\langle \alpha_{i}, \alpha_{j} \rangle = \int_{t_{i}}^{t_{i}+\tau_{i}} \int_{t_{j}}^{t_{j}+\tau_{j}} R_{\phi}(\theta_{i}-\theta_{j}) d\theta_{i} d\theta_{j}$$

En faisant le changement de variables suivant :

$$x_{i} = \theta_{i} - t_{i}$$
$$x_{j} = \theta_{j} - t_{j}$$

on a :

$$\langle \alpha_{i}, \alpha_{j} \rangle = \int_{0}^{\tau_{i}} \int_{0}^{\tau_{j}} R_{\phi}^{\bullet}(t_{i} - t_{j} + x_{i} - x_{j}) dx_{i} dx_{j}$$

et en faisant un développement limité de la fonction  $R_{\phi}^{\cdot}$ , on obtient :

$$R_{\phi}^{\bullet}(t_{i} - t_{j} + x_{i} - x_{j}) = R_{\phi}^{\bullet}(t_{i} - t_{j}) + (x_{i} - x_{j}) \frac{d R_{\phi}^{\bullet}(t_{i} - t_{j})}{d(t_{i} - t_{j})}$$

On a vu que, entre deux impulsions  $\pi$  successives, on se trouve dans la limite réversible, donc q(x<sub>i</sub>-x<sub>j</sub>) « 1, on a alors, puisque la dérivée temporelle de R<sup>•</sup> est proportionnelle à q

$$\mathbb{R}_{\phi}^{\bullet}(\mathsf{t}_{i} - \mathsf{t}_{j} + \mathsf{x}_{i} - \mathsf{x}_{j}) \cong \mathbb{R}_{\phi}^{\bullet}(\mathsf{t}_{i} - \mathsf{t}_{j})$$

et finalement, on a :

$$\langle \alpha_{i}, \alpha_{j} \rangle = \tau_{i} \tau_{j} R_{\bullet}(t_{j} - t_{j}), \quad i \neq j$$
 (II.14)

La variance de l'erreur de phase du N<sup>ième</sup> écho s'écrit alors :

$$\langle \varphi_{N}^{2}(t=2NT) = 2\sigma_{\varphi}^{2}(T) + (N-1)\sigma_{\varphi}^{2}(2T)$$

$$+ 2T^{2} \left\{ (-1)^{N} R_{\varphi}^{*} \left[ (2N-1)T \right] + 2 \sum_{j=1}^{N-1} (-1)^{j} R_{\varphi}^{*} \left[ (2j-1)T \right] \right]$$

$$+ 2 \sum_{j=1}^{N-1} (-1)^{j} R_{\varphi}^{*}(2jT) + 4 \sum_{j=2}^{N-1} \sum_{k=1}^{j-1} (-1)^{k} R_{\varphi}^{*}(2TK) \right\}$$

$$(II.15)$$

En prenant le cas particulier du spectre de bruit de fréquence lorentzien on a R $_{\Phi}^{\bullet}(T) = \sigma_{\Phi}^2 \exp(-q|T|)$ ; on détermine alors facilement  $\langle \varphi_N^2(t=2NT) \rangle$ , soit :

$$\begin{split} \varphi_{N}^{2}(t=2NT) &= 2\sigma_{\Phi}^{2}(T) + (N-1)\sigma_{\Phi}^{2}(2T) \\ &+ 2\sigma_{\Phi}^{2}T^{2} \left\{ (-1)^{N} \cdot x^{N-1/2} - \frac{2x}{1+x} \left[ \left[ x^{-1/2} + 1 \right] \left[ 1 - (-x)^{N-1} \right] \right] \\ &+ 2 \left[ N - 2 + \frac{x}{1+x} \left( 1 - (-x)^{N-2} \right) \right] \right\} \end{split}$$
(II.16)

en posant : x = exp(-2qT)

Pour qT  $\ll$  1, et pour N  $\rightarrow$   $\infty,$  on obtient finalement :

$$\langle \varphi_N^2(t=2NT) \rangle \cong \sigma_{\phi}^2 qt^3/6N^2$$
 (II.17)

Nous notons que par cette méthode de calcul, nous retrouvons les mêmes valeurs de variance de phase pour les premier et second échos que par la première méthode. Ensuite en effectuant une séquence d'échos à N impulsions  $\pi$  de durée t, nous obtenons une réduction en N<sup>2</sup> par rapport à une séquence à une seule impulsion  $\pi$  de même durée t. Ainsi les expériences d'échos de photons à un grand nombre d'impulsions sont bien adaptées pour s'affranchir des fluctuations lentes de la fréquence du champ de la source. Ce phénomène est caractéristique des séquences à multiples impulsions qui réduisent les processus de diffusion (36) . Nous en discuterons plus longuement dans le paragraphe II-4. Pour conclure ce paragraphe, nous avons rassemblé dans le tableau II-2 les résultats que nous avons établis concernant les trois modèles de spectre de bruit de fréquence  $S^{\bullet}_{\star}(\Omega)$ .

#### II - 2) DISPOSITIF EXPERIMENTAL

L'objet de ce chapitre étant d'étudier de façon systématique le rôle du bruit de fréquence d'une source sur des expériences de spectroscopie résolue dans le temps, il est avant tout nécessaire de bien connaître les caractéristiques du bruit de fréquence de la source. Les sources millimétriques que nous utilisons sont quasi parfaites : en effet, le chapitre premier a montré que de telles sources ont une pureté spectrale excellente. Ainsi au lieu de moduler directement la fréquence  $\omega$  de la source, nous avons repris une idée de Szabo et Kroll (44) qui est de moduler la fréquence  $\omega_0$  des molécules par effet Stark, avec un bruit aléatoire bien défini. Dans une première partie, nous décrirons la méthode de modulation de la fréquence des molécules. Dans un second temps nous caractériserons le bruit à l'aide duquel nous allons moduler la fréquence  $\omega_0$ ; enfin le montage complet du dispositif expérimental sera présenté.

## II-2-1) Méthode de modulation Stark

En présence d'un champ électrique statique, les niveaux d'énergie des molécules peuvent se déplacer par effet Stark : la fréquence  $\omega_0$  de la transition en l'absence de champ, devient alors en présence d'un champ électrique, dans le cas d'un effet Stark linéaire :

 $\omega_{\rm S} = \omega_{\rm I} + KV$ 

où K est la constante d'effet Stark de la molécule considérée. La fréquence  $\omega_0$  de la transition en présence d'une tension aléatoire v(t) délivrée par un générateur de bruit, devient :

$$\omega_{S} = \omega_{0} + K_{V}(t) = \omega_{0} + \phi(t)$$
  
$$\phi(t) = K_{V}(t)$$

avec

TABLE 11.2 : Variances de phase de la précession optique et des échos de photons dans les deux limites révensible et irréversible

BUS

		lculé	Non ca	$\sigma_{\phi}^{-2} qt^3/6N^2$	Nième Echo t = 2NT
		3σ <sub>ф</sub> <sup>2</sup> q <sup>4</sup> t <sup>6</sup> /128	σ∳ <sup>2</sup> q <sup>4</sup> t <sup>6</sup> /1024	σ∳ <sup>2</sup> qt <sup>3</sup> /24	Second Echo t = 4T
2 wd x t		σ., <sup>2</sup> q <sup>2</sup> t <sup>4</sup> /8	σ∳ <sup>2</sup> q <sup>2</sup> t <sup>4</sup> /16	σ∳ <sup>2</sup> qt <sup>3</sup> /6	Premier Echo t = 2T
			α∳2t2		Précession Optique t = T
Gaussien	Lorentzien	Exponentiel	Gaussien	Lorentzien	
(ນ)			(Ω) <sup>∲</sup> S		<\u03c62(t)>
IRREVERSIBLE (c	LIMITE	▲ 1]	REVERSIBLE (qT	LIMITE	

- 76 -

La polarisation apparaissant comme un battement entre la fréquence  $\omega$  de la source et  $\varepsilon$  la fréquence  $\omega_0$  des molécules (équation II.4), la modulation que nous avons effectuée sur la fréquence  $\omega_0$ des molécules revient à une modulation de la fréquence  $\omega$  de la source : les signaux observés apparaissent donc comme un battement de fréquence instantanée  $\omega - (\omega_0 + \dot{\phi})$ . Il est facile d'effectuer cette modulation : en utilisant une cellule à plateaux parallèles, nous appliquerons sur l'un des plateaux une tension aléatoire délivrée par un générateur de bruit et sur l'autre, un train d'impulsions mettant en ou hors résonance le gaz de molécules avec le rayonnement.

# II-2-2) Caractérisation du bruit : Analyse spectrale du bruit délivré par le générateur de bruit

Le générateur de bruit que nous avons utilisé dans toutes les expériences que nous relatons dans ce travail est le générateur de bruit Wavetek modèle 132 (45). Ce générateur est une source de bruit analogique qui délivre une tension pseudo-aléatoire v(t) centrée et dont l'amplitude obéit à une loi de probabilité gaussienne. Cette tension, définie par sa valeur quadratique moyenne  $\sigma_{_V}$  est en fait une séquence pseudo-aléatoire de 2<sup>20</sup>-1 niveaux qui sont présentés de façon cyclique à un rythme donné par l'horloge du générateur. La largeur spectrale q de la tension aléatoire est directement proportionnelle à la fréquence de l'horloge qui peut être affichée sur un compteur. L'analyse spectrale de la tension aléatoire v(t) pourra déterminer ses caractéristiques. L'analyse spectrale de cette tension s'effectue de la même façon que l'analyse spectrale de la tension discriminée à la sortie du résonateur que nous avons réalisée dans le premier chapitre. Nous rappelons l'élément essentiel de cette technique : la tension aléatoire dont on mesure la valeur quadratique à l'aide d'un voltmètre alternatif, module en amplitude la tension de sortie d'un synthétiseur de fréquence ; en faisant varier la fréquence du synthétiseur, un récepteur délivre une tension proportionnelle à l'amplitude du spectre de la tension  $S_{ij}(\Omega)$ La figure II-4 donne l'amplitude du spectre de puissance S $_{
m c}(\Omega)$  en fonction du carré de la fréquence. Cette courbe a été tracée dans une échelle semi logarithmique. Les points sont obtenus à partir du spectre enregistré. La droite correspond au spectre de puissance gaussien le plus voisin.



FIGURE II.4 : Représentation semi logarithmique de l'amplitude du spectre de puissance  $S_{v}$  de la tension aléatoire délivrée par le générateur de bruit Wavetek. Les points sont obtenus à partir du spectre expérimental ; la droite correspond au modèle du spectre gaussien le plus voisin. Cet enregistrement correspond à un temps de corrélation  $1/q = 3,5 \mu s$  et à une valeur quadratique moyenne de la tension  $\sigma_{v} = 200 \text{ mV}$ , ce qui permet d'étalonner respectivement l'horloge du générateur et le millivoltmètre CRC.

$$S_{v}(\Omega) = \sigma_{v}^{2} \frac{\sqrt{2\pi}}{q} \exp(-\Omega^{2}/2q^{2})$$

Par cette méthode, on a pu alors étalonner les valeurs de la largeur spectrale q de la tension, correspondant à des fréquences de l'horloge lues sur un compteur de fréquence. Les valeurs de la largeur spectrale q/2 $\pi$  varient de O à 46 KHz. Egalement, nous avons étalonné le voltmètre alternatif de bande 10 Hz - 1 MHz (CRC modèle MVT-712-) que nous allons utiliser pour mesurer à chaque expérience, la valeur quadratique moyenne  $\sigma_V$ . Les valeurs de  $\sigma_V$  peuvent varier de O à 1,5 volt sur une charge de 50  $\Omega$ .

Cette méthode d'analyse spectrale a permis de définir parfaitement le bruit avec lequel nous allons moduler la fréquence des molécules, dans les expériences réalisées.

Nous avons utilisé, au début de l'étude un autre générateur de bruit (General Radio Company, modèle 1390-8) : c'est une source de bruit analogique dont on contrôle la bande par un filtre RC ; le spectre de puissance de la tension délivrée par ce générateur est donc lorentzien.

Nous avons préféré privilégier le générateur de bruit Wavetek à celui-ci, car d'une part ce générateur présentait un bruit non symétrique et d'autre part, nous avons vu précédemment que le spectre lorentzien présente moins d'intérêt d'un point de vue théorique que le spectre gaussien (voir tableau II-1).

#### II-2-3) Description du dispositif expérimental

Les expériences de transitoires cohérents ont été réalisées à des pressions allant de 0,1 à 20 mTorr sur la transition  $(J, |KM| = 1,1 \rightarrow 2,1)$  du fluorure de méthyle CH<sub>3</sub>F à la fréquence  $\omega_0 / 2\pi = 102,140908$  GHz (46). Cette transition a été retenue, car elle présente des caractéristiques favorables pour la réalisation des expériences de transitoires cohérents :

- Cette transition, puisque la molécule  $CH_3^F$  est une toupie symétrique, présente en effet Stark linéaire (de l'ordre de 300 KHz/V/cm) indispensable pour moduler aléatoirement la fréquence  $\omega_3$  des molécules.

- Cette transition est fort intense : le coefficient d'absorption moléculaire est de  $10^{-3}$  cm<sup>-1</sup> (41).

- L'élément de matrice de moment dipolaire est important (<µ> = 0,835 D). Disposant dans la cellule d'une puissance de 10 mW, il est possible d'avoir une largeur par saturation  $\omega_1/2\pi$  = 550 KHz; ce qui permet des durées des impulsions  $\pi/2$  et  $\pi$  respectivement de l'ordre de 450 ns et 900 ns. Par comparaison, la largeur par effet Doppler est de 110 KHz inférieure à la largeur par saturation : on sature ainsi facilement tout le profil Doppler.

- La largeur de la raie par collisions est de 19 KHz/mTorr (41)

Ces expériences ont été réalisées en utilisant le dispositif expérimental dont le schéma est présenté sur la figure II-5.

#### 1) Source et stabilisation

La source hyperfréquence utilisée est le klystron Varian (modèle VRB 2113 B) de la gamme 97-103 GHz, dont on a parlé dans le premier chapitre (§ I.2.3.1) ; il est stabilisé en phase à la fréquence de la transition étudiée à l'aide de la chaine d'asservissement décrite en détail dans le premier chapitre. On peut considérer ce klystron comme une source quasi parfaite : en effet le temps de diffusion de la phase  $\tau_d$  est de 1,8 ms, très grand devant le temps de relaxation moléculaire (< 80 µs).

## 2) Cellule Stark

1 1 -

La cellule Stark de longueur 500 mm est réalisée à l'aide de deux plateaux parallèles distants de 15 mm. Sur l'un des plateaux de la cellule est appliquée la tension délivrée par un générateur Stark : ce générateur fournit des impulsions d'amplitude réglable de 3 à 50 volts maximum avec des temps de montée et de descente de l'ordre de 50 ns ; la durée des impulsions réglable par pas de 50 ns avec une précision de 5 ns est commandée par une horloge. La fréquence de répétition de la séquence Stark est de 5 KHz ; cette valeur est suffisamment basse



- 81 -

•

( gis

pour assurer un temps de repos nécessaire au retour à l'équilibre du gaz. Le temps de relaxation maximal pour la pression la plus basse  $(p \cong 0, 1 \text{ mTorr})$  est de 80 µs, et est donc inférieur à la période de répétition (200 µs).

Sur l'autre plateau de la cellule est appliquée de façon permanente la tension aléatoire délivrée par le générateur de bruit et ensuite amplifiée par un amplificateur continu, de bande passante 1 MHz, d'impédance d'entrée Z = 50  $\Omega$ , et dont le niveau de sortie est de 25 volts crête à crête sur une charge capacitive de 10 nF. Compte tenu de la valeur de la constante d'effet Stark de la molécule, la valeur quadratique moyenne des écarts de fréquence est de l'ordre de 1 MHz au maximum.

#### 3) Détection et acquisition du signal

Le signal est détecté par un mélangeur à diode Schottky (Varian) polarisé ; puis il passe par un préamplificateur A.D.E. bas bruit (Réf. PA 01 30 10), de gain 27 dB et de largeur de bande 1 KHz - 170 MHz, puis par un amplificateur de gain variable 40-60 dB, de largeur de bande 150 Hz - 110 MHz.

Pour améliorer les conditions d'observation, nous utilisons une technique d'échantillonnage rapide à l'aide d'un moyenneur numérique multicanal: (256 canaux - ATNE Orsay) et disposant d'une tête d'échantillonnage de résolution temporelle 10 ns.

Afin d'obtenir un rapport signal sur bruit satisfaisant, le nombre moyen d'accumulations est de 250 000.

Ce moyenneur numérique offre la possibilité d'introduire par son horloge, un retard intermédiaire, réglable par pas minimal de 10 ns entre le 128<sup>ième</sup> canal et la 129<sup>ième</sup> canal : ainsi on peut comparer avec une plus grande résolution deux parties d'un même signal (par exemple les premier et second échos). Les signaux moyennés sont transcrits sur une table traçante ou transférés dans un calculateur Hewlett Packard (H P-85), relié à l'échantillonneur par une interface entrée-sortie (H P-GPIO). Ces données peuvent être traitées immédiatement, mais la durée du calcul étant assez longue (15 minutes environ), elles sont alors stockées sur bande magnétique pour être traitées ultérieurement.

#### II - 3) RESULTATS EXPERIMENTAUX

Dans ce paragraphe, nous allons présenter quelques résultats expérimentaux relatifs à une séquence d'échos de photons à trois impulsions ( $\pi/2,\pi,\pi$ ). Nous nous sommes limités à une séquence d'échos de photons à trois impulsions, car l'horloge du générateur d'impulsions ne peut fournir au maximum que trois impulsions ; nous avons ainsi étudié expérimentalement l'influence du bruit de fréquence sur les signaux de précession optique et des premier et second échos. Toutes les expériences ont été réalisées avec le générateur de bruit Wavetek décrit précédemment et fournissant un bruit de fréquence dont le spectre est proche du spectre gaussien théorique.

#### II-3-1) Précession optique

Dans les expériences que nous avons réalisées, la précession optique est principalement amortie par l'effet Doppler : l'amortissement inhomogène Doppler est de l'ordre de 110 KHz ce qui correspond à un temps caractéristique d'amortissement  $\tau_{\rm D}$  = 2/kv<sub>o</sub> = 2,3 µs.

Comme la bande de bruit du générateur a une largeur maximale de q/2 $\pi$  = 46 KHz, correspondant à un temps de corrélation 1/q = 3,5 µs l'étude expérimentale se limite donc aux valeurs de qt « 1 : seule la limite réversible peut être mise expérimentalement en évidence.

Nous avons vu que le bruit de fréquence  $\phi(t)$  dans la limite réversible (qt « 1) introduit sur les signaux de précession optique

- 83 -

un amortissement supplémentaire de la forme  $\exp(-\frac{\phi^2 t^2}{2})$  directement relié à la valeur quadratique moyenne des écarts de fréquence  $\sigma_{+}^{\bullet}$ .

Ainsi pour mettre en évidence cet amortissement, nous avons effectué une série d'expériences à une valeur de 1/q donnée (3,5 µs) et en faisant varier la valeur quadratique moyenne  $\sigma_{\Phi}^{\bullet}$  des écarts de fréquence. Les expériences ont été réalisées à une pression de l'ordre de P  $\cong$  1 mTorr correspondant à un temps de relaxation collisionnelle T<sub>2</sub> = 8,4 µs.

La figure II-6 présente quelques résultats typiques de signaux de précession optique a) sans bruit; b) et c)avec un bruit de fréquence dont la valeur quadratique moyenne  $\sigma_{\phi}^{*}/2\pi$  est respectivement 70 KHz et 205 KHz. De façon qualitative, on observe que pour la valeur  $\sigma_{\phi}^{*}/2\pi$  = 205 KHz, la précession optique s'amortit plus vite, alors que pour la valeur  $\sigma_{\phi}^{*}/2\pi$  = 70 KHz, elle est faiblement atténuée.

Pour avoir des résultats plus quantitatifs, les signaux expérimentaux ont été ensuite transférés dans des fichiers de données du calculateur H-P-85 pour être traités numériquement.

Les courbes expérimentales sont alors ajustées par un calcul de moindres carrés sur une courbe dont la forme théorique est la suivante :

$$A_{o} \cos\left[\Delta\omega t + \varphi_{o}\right] \exp\left[-\alpha t^{2}\right] \exp(-t/T_{2}) + Bt + C$$

Les paramètres à déterminer sont l'amplitude du signal A , la fréquence de battement  $\Delta \omega$ , la phase  $\varphi_{0}$ , le paramètre d'amortissement

 $\alpha = \frac{\sigma_{\phi}^2}{2} + \frac{\pi^2 \Delta v_D^2}{Log_2}$  ( $\Delta v_D$  est la mi largeur à mi hauteur Doppler), la pente

B et l'ordonnée à l'origine C de la ligne de base que nous avons ajoutée à la forme théorique du signal de précession optique. Comme la pression, dans ces expériences est bien définie, et pour éviter des problèmes de corrélation entre les paramètres, le temps T<sub>2</sub> est fixé à la valeur prévue (8,4 μs) pour la pression d'observation (1 mTorr). Les valeurs



FIGURE II.6 : Mise en évidence de l'amortissement dû au bruit de fréquence dans le cas d'une précession optique ; on s'est placé dans la límite réversible  $(1/q = 3,5 \ \mu s)$  à)  $\sigma_0^2/2\pi = 0$  : l'amortissement est uniquement dû à l'effet Doppler ( $\Delta v_D = 110$  KHz). b)  $\sigma_{\phi}/2\pi$  = 70 KHz : la précession optique est peu affectée par le bruit de fréquence. c)  $\sigma_{\hat{\Phi}}/2\pi$  = 205 KHz : l'amortissement ne dépend plus que du bruit de fréquence. Les courbes théoriques ont été obtenues par un ajustement des courbes expérimentales à l'aide d'un calcul de moindres carrés (voir texte). On obtient a)  $\Delta v_p = (123 \pm 3)$  KHz ; b)  $\sigma_{\Phi}^{*}/2\pi = (65 \pm 9)$  KHz ; c)  $\sigma_{\Phi}^{*}/2\pi = (215 \pm 12)$  KHz. On a représenté en dessous des courbes théoriques la différence entre les courbes expérimentales et théoriques. Dans les trois cas, la valeur quadratique moyenne des résidus est de 3 %.

estimées des paramètres sont obtenues par approximations successives en effectuant un certain nombre d'itérations à partir des valeurs initiales approchées. Notons toutefois que la fixation de la valeur initiale de la phase  $\varphi_0$ , contrairement au cas de celle des autres paramètres, est très critique pour éviter une divergence du processus d'ajustement : elle était donc déterminée en calculant numériquement la dérivée du signal enregistré à l'origine.

Le nombre d'itérations du moindre carré doit être tel qu'un critère de convergence soit satisfait : le critère utilisé est que les paramètres n'évoluent plus d'une itération à la suivante. L'écart type des résidus permet alors d'estimer l'ordre de grandeur du rapport signal sur bruit de la mesure expérimentale. Egalement ce calcul de moindres carrés donne une estimation de la précision sur les paramètres obtenus.

Le calcul de moindres carrés pour un signal de précession optique en l'absence de bruit de fréquence ( $\sigma_{\Phi}^{\bullet} \approx 0$ ) a donné la valeur du temps caractéristique de l'effet Doppler  $\tau_{D} = 2,11 \pm 0,06 \ \mu s$  (la valeur théorique est  $\tau_{D} = 2,3 \ \mu s$ ). Nous avons tracé (figure II-7) les valeurs ajustées du paramètre  $\alpha/2\pi^{2}$  en fonction du carré de la valeur  $\sigma_{\Phi}^{\bullet}/2\pi$  appliquée. Nous obtenons alors des points qui s'alignent bien sur la

appliquée. Nous obtenons alors des points qui s'alignent bien sur la droite de pente 1, d'équation  $\frac{\alpha}{2\pi^2} = \frac{\Delta v_D^2}{2\text{Log}2} + \left(\frac{\sigma_{\phi}}{2\pi}\right)^2 \text{ (en prenant } \Delta v_D$ 

trouvé par le calcul de moindres carrés) pour les valeurs de  $\sigma_{\phi}^{\bullet}/2\pi < 200$  KHz, c'est-à-dire pour les valeurs de  $\sigma_{\phi}^{\bullet}/2\pi$  faibles devant la largeur par saturation  $\omega_1/2\pi \cong 500$  KHz. Par contre pour les valeurs de  $\sigma_{\phi}^{\bullet}/2\pi$  supérieures à 200 KHz, on n'est plus dans le cadre des approximations, et la loi de l'amortissement dû au bruit de fréquence n'est plus vérifiée.

La constante d'amortissement  $\alpha$  est beaucoup plus grande que celle prévue : dans ce cas, on n'irradie plus tout le profil inhomogène incluant l'élargissement Doppler et l'élargissement dû au bruit de fréquence ; l'efficacité de l'impulsion  $\pi/2$  est alors réduite, et il serait donc nécessaire de résoudre numériquement les équations de Bloch-Maxwell.



FIGURE II.7 : Etude systématique de l'influence de la valeur quadratique moyenne des écarts de fréquence  $\sigma_{\dot{\Phi}}/2\pi$  sur la précession optique dans la limite réversible  $(1/q = 3,5 \ \mu s)$ . Les points correspondent aux constantes d'amortissement  $\alpha$ déterminées par le calcul de moindres carrés pour différentes valeurs du carré de l'amplitude du bruit  $\left(\sigma_{\phi}^{*}/2\pi\right)^{2}$ appliqué.

applique. On a tracé la droite théorique  $\alpha/2\pi^2 = \frac{\Delta v_D^2}{2 \log 2} + \left(\frac{\sigma_{\Phi}}{2\pi}\right)^2$ , pour la valeur de  $\Delta v_{D}$  trouvée par le calcul de moindres carrés (cf. fig. II.6).

L'écart observé pour  $\sigma_{\dot{\Phi}}^{}/2\pi{>}200$  KHz est dû à l'influence du bruit de fréquence dans la phase de préparation qui est négligé dans notre modèle.

#### II-3-2) Echos de photons

Les résultats théoriques que nous avons établis, ont montré que le bruit de fréquence de la source affecte de façon différente les échos de photons selon les valeurs du nombre moyen de sauts de fréquence qt : pour les faibles valeurs de qt, c'est-à-dire dans la limite réversible, les échos ne sont pas affectés par le bruit de fréquence ; par contre pour les fortes valeurs de qt, c'est-à-dire dans la limite irréversible, les échos sont fortement amortis.

Nous présentons les résultats expérimentaux obtenus d'une part lors d'une séquence d'écho de photons à deux impulsions et d'autre part lors d'une séquence d'échos de photons à trois impulsions : ces expériences ont pu mettre en évidence les deux limites réversible et irréversible.

#### i) Echos de photons à deux impulsions

Pour mettre en évidence la dépendance en qt de l'amortissement introduit par le bruit de fréquence sur le premier écho, nous avons effectué une série d'expériences pour diverses valeurs de l'amplitude du bruit de fréquence  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$  en faisant varier la durée de corrélation 1/q du bruit de fréquence, ceci pour une durée fixée de la séquence ( t = 13 µs).

Dans un souci de faciliter les expériences et pour une interprétation plus facile des résultats, nous avons préféré travailler en fonction du temps de corrélation 1/q (pour une durée fixée t) plutôt qu'en fonction de la durée de la séquence (à q fixé). En effet, en choisissant cette méthode, on effectue uniquement une modification du bruit de fréquence, la séquence n'étant point modifiée et l'interprétation est plus facile, puisque seul le bruit de fréquence varie.

Les valeurs du temps de corrélation 1/q varient de 3,5 µs à 1000 µs ; les valeurs de l'amplitude de bruit de fréquence  $\sigma_{\phi}^{*/2\pi}$  restent inférieures ou égales à la largeur par saturation  $\omega_{1}^{*}/2\pi$  : l'étude préliminaire sur la nutation (II.1.2.1) a montré que dans ce cas, les

impulsions  $\pi/2$  et  $\pi$  ont respectivement même amplitude en présence de bruit qu'en l'absence de bruit.

La figure II-8 représente l'atténuation du premier écho en fonction du nombre moyen de changements de fréquence qt pour diverses valeurs de l'amplitude du bruit de fréquence  $\sigma_{\phi}^{*/2\pi}$ . La durée de la séquence est dans tous les cas de t = 13 µs ; les amplitudes d'échos sont rapportées à celles observées en l'absence de bruit.

Cette figure met en évidence les deux limites réversible et irréversible.

Dans la limite réversible (qt « 1), l'écho n'est pas affecté par le bruit de fréquence de la source et quelle que soit la valeur de l'amplitude de bruit de fréquence  $\sigma_{\phi}^*/2\pi$  les phases se reconstruisent parfaitement : ainsi par la méthode des échos de photons, nous avons la même résolution avec une source de largeur spectrale  $\omega_d \approx 450$  KHz qu'avec une source quasi parfaite (de largeur spectrale  $\omega_d \approx 450$  KHz comme l'est le klystron 102 GHz. C'est l'avantage de la technique des échos de photons, lorsque les sources de qualité spectrale médiocre, sont caractérisées par des fluctuations lentes de la fréquence. Puis lorsque qt croît, l'écho est alors affecté par le bruit de fréquence et l'atténuation est d'autant plus importante que l'amplitude du bruit de fréquence  $\sigma_{\phi}^*$  est grande.

Dans la limite irréversible (qt » 1), les changements de fréquence sont si nombreux qu'en aucun cas, on peut obtenir une remise en phase de l'écho : l'écho est alors fortement attenué.

Pour vérifier ces expériences, nous avons calculé exactement les courbes théoriques qui donnent l'amortissement supplémentaire dû au bruit de fréquence. Ces courbes, tracées en trait continu sur la figure II-8, ne résultent pas d'un ajustement des paramètres  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$  et qt, mais sont obtenues en utilisant directement les valeurs imposées à l'expérience à savoir t = 13 µs et  $\sigma_{\phi}^{\bullet}/2\pi$  = 55; 290; 450 KHz ; on note le très bon accord avec les mesures expérimentales.

FIGURE II.8 : Variation de l'amplitude du premier écho en fonction du nombre moyen de sauts valeurs caractéristiques du bruit de fréquence appliqué (of et q). obtenues par un calcul exact de l'amortissement sont tracées en utilisant les amplitudes d'échos sont rapportées à celles observées en l'absence de bruit.  $\sigma_{\dot{b}}/2\pi.$  La durée de la séquence d'écho est dans tous les cas de 13  $\mu s$  ; les de préquence at pour diverses valeurs de l'amplitude du bruit de préquence Les points correspondent aux mesures expérimentales. Les courbes continues



- 90 -

On peut également remarquer sur la figure II-8 (et en particulier sur la courbe théorique qui donne l'amortissement du premier écho pour une amplitude de bruit de fréquence  $\sigma_{\phi}^{*}/2\pi = 55$  KHz) que pour les fortes valeurs de q/2 $\pi$ , telles que l'on ait q/ $\sigma_{\phi}^{*}$ » 1, l'atténuation due au bruit de fréquence diminue. Cet effet peut être expliqué de la façon suivante : les changements de fréquence sont en quelque sorte moyennés à zéro, lorsque leur rythme devient très élevé. Ce phénomène est à rapprocher au phénomène de "rétrécissement par le mouvement" de Dicke (19). Cet effet n'a pas pu être observé expérimentalement dans le cas des échos de photons à cause de la valeur limitée de largeur de bande de bruit q de notre générateur, mais l'a été lors des expériences de Lamb dip décrites dans le troisième chapitre.

#### ii) Echos de photons à trois impulsions

Les expériences d'échos de photons à trois impulsions que nous avons réalisées, mettent également en évidence les deux limites réversible et irréversible, mais elles apportent un résultat nouveau par rapport aux premières expériences présentées ci-dessus puisqu'elles mettent en évidence que dans la limite réversible, le second écho est moins affecté par le bruit de fréquence que le premier écho.

Nous avons effectué une série d'expériences d'échos de photons à trois impulsions ( $\pi/2,\pi,\pi$ ) en faisant varier le temps de corrélation 1/q pour une séquence d'impulsions donnée. Lors des comparaisons des amortissements des premier et second échos, on se rappellera que le premier écho apparaît à l'instant t<sub>1</sub> tandis que le second écho apparaît à l'instant t<sub>2</sub> = 2t<sub>1</sub>.

Les signaux correspondant aux premier et second échos ont été enregistrés simultanément avec l'échantillonneur numérique en mettant un retard intermédiaire convenable entre les 128 premiers et 128 derniers canaux.

- 91 -

La figure II-9 illustre de façon qualitative ce phénomène ; elle représente le premier et le second écho enregistrés; a : sans bruit de fréquence : le second écho a une amplitude plus petite que celle du premier du fait des collisions moléculaires plus nombreuses ; b : avec un bruit de fréquence de valeur quadratique moyenne  $\sigma_{\phi}^{*}/2\pi =$ 450 KHz et de durée de corrélation 1/q = 41 µs. On note que le second écho est moins affecté par le bruit de fréquence que le premier écho . Rapportées aux amplitudes observées en l'absence de bruit (a), celles observées en présence de bruit (b) (respectivement 33% pour le premier écho, 82% pour le second écho) sont en bon accord avec celles prévues théoriquement (respectivement 36%, 87%).

De façon plus systématique, nous avons représenté sur la figure II-10, les variations de l'amplitude du premier (resp. second) écho en fonction du nombre moyen de sauts de fréquence pour une valeur quadratique moyenne  $\sigma_{\phi}^{*}/2\pi$  = 450 KHz. Les échos sont observés aux instants  $t_1$  = 9 µs (resp.  $t_2$  = 18 µs) et leurs amplitudes sont rapportées à celles observées en l'absence de bruit.

Lorsque les changements de fréquence sont peu nombreux (qt<sub>1,2</sub> « 1), les premier et second échos ne sont pas affectés par le bruit de fréquence : il y a donc une remise en phase correcte des signaux à l'instant de chaque écho. Ensuite lorsque le nombre de changements de fréquence croît, on note que le second écho est moins affecté que le premier écho. Ce phénomène de réduction est caractéristique des séquences à multiples impulsions (séquences de Carr-Purcell) : nous en reparlerons plus longuement dans le prochain paragraphe.

La figure II-10 montre également que l'allure des courbes correspondant aux amortissements du premier écho (en exp  $(-\sqrt{q^2t^4})$ ) et du second écho (en  $\exp(-\sqrt{q^4t^6})$ ) sont bien différentes.

Enfin lorsque les changements de fréquence sont très nombreux  $(qt_{1,2} \gg 1)$ , les premier et second écho sont fortement amortis.

- 92 -



FIGURE II.9 : Comparaison des effets de bruit de fréquence des premier et second échos dans la limite réversible. a) Sans bruit de fréquence ; le second écho a une amplitude plus petite que celle du premier du fait des collisions moléculaires  $(T_2 \approx 10,5 \ \mu s)$ . b) Bruit de fréquence :  $\sigma_{\phi}/2\pi = 450$  KHz et  $1/q = 41 \ \mu s$ ). Le second écho est moins affecté par le bruit de fréquence que le premier écho. Rapportées aux amplitudes observées en l'absence de bruit

 (a), celles observées en présence de bruit (b) [respectivement 33 % pour le premier écho, 82 % pour le second écho], sont en bon accord avec celles prévues théoriquement [respectivement 36 %, 87 %].

La courbe en créneaux schématise la séquence d'impulsions Stark utilisée dans cette expérience.



FIGURE II.10 : Variation de l'amplitude du premier [resp. second] écho en fonction du nombre moyen de sauts de fréquence. La valeur moyenne quadratique des écarts de fréquence est  $\sigma_{\phi}^{-}/2\pi = 450$  KHz. Les échos sont observés aux instants  $t_1 = 9 \mu s$  [resp.  $t_2 = 18 \mu s$ ]. Les amplitudes des échos sont rapportées à celles observées en l'absence de bruit. Les triangles [resp. points] correspondent aux mesures expérimentales du premier [resp. second] écho. Les courbes continues obtenues par un calcul exact de l'amortissement sont tracées en utilisant les valeurs caractéristiques du bruit de fréquence appliquées  $[\sigma_{\phi}^{-}$  et q]. Pour vérifier ces expériences, nous avons tracé en trait continu sur la figure II-10, les courbes correspondant au calcul exact de l'amortissement du premier écho et de l'amortissement du second écho en utilisant les valeurs expérimentales caractéristiques du bruit de fréquence. On peut observer un bon accord entre expérience et théorie.

## CONCLUSION

Les résultats expérimentaux présentés ci-dessus, sont en bon accord avec les prévisions théoriques que nous avons établies : ces expériences de spectroscopie résolue dans le temps (précession optique et échos), en présence d'un bruit de fréquence à diffusion de phase, ont pu fournir la vérification de l'amortissement supplémentaire introduit par ce bruit de fréquence, dans le cas d'un moyennage sur un grand nombre de séquences, et ont clairement mis en évidence les deux limites réversible et irréversible. Ces expériences ont montré l'intérêt des expériences d'échos de photons à plusieurs impulsions qui permettent de s'affranchir des fluctuations lentes de la fréquence du champ électromagnétique de la source ; ainsi il est donc possible de réaliser des expériences de spectroscopie à très haute résolution, par la méthode des échos de photons, lorsque nous sommes en présence de sources présentant des fluctuations de fréquence lentes.

## II - 4) ANALOGIE AVEC D'AUTRES PROCESSUS DE DIFFUSION

Les résultats théoriques que nous avons établis auparavant concernant l'amortissement dû au bruit de fréquence des premier et second échos dans la limite réversible (qt « 1) et qui ont été vérifiés par une expérience d'échos de photons à trois impulsions méritent quelques commentaires et de faire un rapprochement avec les processus de diffusion moléculaire spatiale (36,48) ou de vitesse (49,50).

En effet pour une durée identique de la séquence, nous avóns montré expérimentalement que les effets du bruit de fréquence sont plus faibles sur le second écho que sur le premier. Egalement, pour une

- 95 -

séquence d'échos de photons à N impulsions  $\pi$ , nous avons montré théoriquement que les effets de la diffusion du bruit de phase sont réduits d'un facteur N<sup>2</sup> par rapport à une séquence d'écho de photon à une seule impulsion  $\pi$ , ceci pour une même durée de l'expérience.

Cette réduction des effets de diffusion est caractéristique des séquences à plusieurs impulsions ; nous allons illustrer ce phénomène en donnant quelques exemples d'autres processus de diffusion. Notons que l'analogie entre ces différents processus ne devra pas être poussée trop loin, car dans notre cas, la phase diffuse alors que la fréquence est stationnaire. Par contre dans les exemples que nous présentons, c'est la fréquence qui diffuse.

Lors d'expériences d'échos de spin, en résonance magnétique nucléaire, Hahn (35) a montré que la loi de variation de l'amplitude de l'écho à l'instant t = 2T n'avait pas la forme prévue en  $\exp(-2T/T_2)$  mais une décroissance plus rapide décrite par une loi en  $\exp(-k(2T)^3)$  caractéristique d'un phénomène dû à la diffusion moléculaire spatiale, à travers un champ magnétique H inhomogène. Cet effet de diffusion peut s'expliquer de cette façon : par suite du mouvement brownien, chaque molécule subissant un grand nombre de collisions se déplace au cours du temps et donc voit un champ magnétique H qui varie légèrement. Sa fréquence ( $\omega \sim H$ ) devient alors une fonction du temps et le déphasage au cours de la durée (0,2T) est :

$$\phi(2\tau) = \int_{\tau}^{2\tau} \Delta\omega(t') dt' - \int_{0}^{\tau} \Delta\omega(t') dt$$

La fréquence  $\Delta \omega(t')$ , fonction de la position z(t') de la molécule, diffuse donc puisque d'après la théorie du mouvement brownien (12) la position diffuse.

Les changements de fréquence sont donc dus à des changements de position de la molécule. On obtient alors l'amortissement qui masque la décroissance collisionnelle en  $exp(-2\tau/T_2)$ .

- 96 -

Carr et Purcell (36) ont apporté une réduction importante de cet effet par la technique des séquences d'échos à multiples impulsions. En effectuant une séquence d'échos de spin à N impulsions  $\pi$ , ils obtiennent une réduction proportionnelle à N<sup>2</sup> de ce processus de diffusion par rapport à une séquence à une seule impulsion  $\pi$ , ceci pour une même durée d'expérience t ; nous avons obtenu la même réduction lorsque nous avons étudié théoriquement une séquence d'échos de photons à N impulsions  $\pi$  (cf. § II.1.3.3).

Berman(49) puis Flusberg (50) ont décrit des expériences d'échos de photons en tenant compte des collisions moléculaires qui changent la vitesse des molécules. Lors de ces collisions qui ne détruisent pas la cohérence, les molécules subissent de faibles changements de vitesse  $\Delta v$  qui induisent une modification de l'effet Doppler ( $k\Delta v$ ) et qui perturbent la remise en phase des polarisations microscopiques.

Contrairement au cas des expériences de Résonance Magnétique Nucléaire, le rythme  $\Gamma$  des collisions est très faible. Dans ces conditions, on observe deux régimes asymptotiques différents selon qu'on s'intéresse à la loi de variation de l'écho à court ou à long termes.

Enfin, Rohart et Macke ont décrit des expériences d'échos de photons en champ Stark inhomogène (47) et observent alors un amortissement supplémentaire. Cet amortissement, qui augmente avec l'amplitude du champ Stark inhomogène, est causé par les mouvements moléculaires alors que les collisions n'ont pas encore détruit les cohérences. Ces mouvements moléculaires (régime de vol libre) n'ont pas un caractère aléatoire, mais parfaitement déterministe. En effet Rohart et Macke l'ont montré lors d'une expérience d'échos de photons à trois impulsions où le premier écho est complètement atténué, alors le second écho n'est pas affecté par le champ Stark inhomogène.

- 97 -

# CHAPITRE III

-----

--- --- ---

INFLUENCE DU BRUIT DE FREQUENCE EN SPECTROSCOPIE D'ABSORPTION SATUREE

- EXPÉRIENCES DE LAMB DIP -

#### INTRODUCTION

La résolution en spectroscopie linéaire dans des échantillons gazeux a été longtemps limitée par l'effet Doppler qui donne à la raie d'absorption une largeur relative  $\Delta \omega_D / \omega \,^{\simeq} 10^{-6}$ . Avec l'apparition des méthodes de spectroscopie non linéaire, il est alors devenu possible de réduire fortement cette limitation. En utilisant la réponse non linéaire d'un système moléculaire à un rayonnement électromagnétique saturant, on peut sélectionner une seule classe moléculaire de vitesse v. Le spectre d'absorption se compose alors d'une raie élargie par effet Doppler avec un trou de largeur égale à la largeur homogène de la transition (voir par exemple (51,52) ). Parmi ces méthodes, on peut citer la technique d'absorption saturée, dont le principe est le suivant (51) :

- un premier rayonnement intense, appelé "pompe", de pulsation  $\omega$  et de vecteur d'onde  $\vec{k}$  se propage à travers un gaz de molécules ; il interagit non linéairement avec les molécules ayant une vitesse  $\vec{v}$  telle que :

$$\omega = \omega_0 + \overrightarrow{kv}$$

 $\omega$  est la pulsation d'absorption résonante de la molécule au repos  $(\vec{v} = 0)$ 

- un second rayonnement, de faible intensité, issu de la même source après réflexion sur un miroir partiellement réfléchissant est envoyé sur le gaz de molécules dans la direction opposée (vecteur d'onde  $-\vec{k}$ ). Ce rayonnement, appelé encore "sonde" interagit alors sélectivement avec les molécules de vitesse  $\vec{v'}$ , telle que :

$$\omega = \omega_0 - kv'$$

Si l'on étudie l'absorption du rayonnement de sonde en fonction de la pulsation  $\omega$ , on observe alors le profil de la raie élargie par effet Doppler avec une diminution de l'absorption en  $\omega = \omega_0$ , puisque les deux rayonnements interagissent alors avec les mêmes molécules dont la vitesse axiale v est nulle.

Ce creusement au centre du profil Doppler est appelé Lamb dip. Un exemple de Lamb dip obtenu par cette méthode, en ondes stationnaires est représenté figure III-1. Il a été réalisé sur la transition



FIGURE III.1 : Exemple de Lamb dip sur la transition  $J = 0 \rightarrow J = 1$  du monoxyde de carbone CO. Pression  $\approx 1$  mTorr. La courbe "- — - — -" représente la courbe de transmission en fréquence du résonateur en l'absence de gaz, la courbe "-----", le profil de la raie non saturée élargie par effet Doppler. La mi-largeur à mi-hauteur du Lamb dip vaut  $\Delta v_{HWHM} = 16$  KHz ; comparée à la largeur Doppler de la raie (140 KHz), elle met en évidence le gain en résolution apportée par cette technique (de l'ordre de 10 dans ce cas). J = 0  $\rightarrow$  J = 1 du monoxyde de carbone CO à une fréquence de 115 GHz. Cette figure met en évidence le gain en résolution apporté par cette technique.

Cette méthode de spectroscopie à haute résolution, avec laquelle on obtient un signal de Lamb dip de largeur spectrale égale à la largeur homogène  $\Gamma$  de la transition, nécessite alors une bonne stabilité de la fréquence de la source.

Nous avons vu dans le second chapitre que c'est également le cas dans les expériences de spectroscopie résolue dans le temps, où les signaux d'échos de photons, par compensation de l'effet inhomogène Doppler sont caractéristiques du temps de relaxation  $T_2$ .

Ainsi il est intéressant d'examiner, sur des expériences de spectroscopie d'absorption saturée, l'influence d'un bruit de fréquence de source. On pourra alors comparer ces expériences de spectroscopie d'absorption saturée en présence de bruit de fréquence, avec celles en spectroscopie résolue dans le temps.

Une étude expérimentale de signaux de Lamb dip en présence d'un bruit de fréquence a donc été entreprise, en utilisant une méthode aussi systématique que celle utilisée dans le second chapitre : on contrôle parfaitement le bruit de fréquence qui module la fréquence d'une source quasi parfaite. La première partie de ce chapitre décrira donc le dispositif expérimental utilisé pour mener à bien ces expériences. Dans une seconde partie, on présentera les résultats expérimentaux obtenus : on donnera alors, dans une troisième partie, une bonne illustration du phénomène de "rétrécissement par le mouvement" observé dans ces expériences.

Enfin, contrairement au cas des expériences de spectroscopie résolue dans le temps pour lesquelles quelques travaux ont examiné l'influence de la pureté spectrale, aucune étude théorique sur ce sujet n'a à notre connaissance , été publiée. Ainsi, nous avons commencé à esquisser une première étude théorique de Lamb dip en présence de bruit de fréquence. Cette première approche a permis d'expliquer les résultats expérimentaux que l'on a obtenus.

#### III - 1) DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Après avoir justifié le choix de la molécule de monoxyde de carbone pour réaliser les expériences de Lamb dip, nous décrirons le dispositif expérimental utilisé et dont le schéma de principe est présenté sur la figure III-2. Nous insisterons notamment sur le dispositif de modulation de fréquence de la source et sur le système de détection et d'acquisition des signaux.

## III-1-1) La molécule

Les expériences ont été réalisées à très basse pression (P < 1 mTorr) sur la transition J = 0  $\rightarrow$  J = 1 de la molécule de monoxyde de carbone CO à la fréquence  $\omega_0/2\pi$  = 115,271199 GHz (27) dont le coefficient d'absorption est  $\beta_{\infty}$  = 3,1.10<sup>-4</sup> cm<sup>-1</sup> (53). Cette molécule a été retenue, car elle présente des caractéristiques favorables pour l'observation de Lamb dip de largeur spectrale faible. En effet cette molécule a un moment dipolaire permanent  $\mu$  faible (0,112 Debye (53) ) : on peut donc utiliser une puissance électromagnétique importante sans trop saturer la transition, ce qui facilite la détection.

Egalement la largeur par collisions intermoléculaires CO-CO est faible :  $\Delta v_{HWHM} = 3,45$  KHz/mTorr (54) ; par comparaison, la largeur inhomogène due à l'effet Doppler est de l'ordre de 140 KHz.

La cellule utilisée est le résonateur plan cylindrique entre plateaux parallèles (55) déjà utilisé pour analyser les caractéristiques spectrales des klystrons (§ I-2-2).





FIGURE 111.2 : Schéma du dispositis expêrimental

BUS

- 103 -

•
### III-1-2) Source

La source hyperfréquence dont on va moduler la fréquence, est le klystron Varian (modèle VRT 2123) de la gamme 110-118 GHz analysé dans le premier chapitre. Ce klystron, dont la fréquence est voisine de celle de la transition de la molécule, est stabilisé sur l'harmonique d'ordre pair (2N = 30) du klystron Férisol (de fréquence voisine de 3,841 GHz) à l'aide du synchriminateur Schomandl (de fréquence intermédiaire  $v_{\rm FTK}$  = 30 MHz).

L'étude préliminaire (§ I-2-4) nous a montré que ce klystron peut être considéré comme une source quasi-parfaite : son temps de diffusion de la phase est de  $\tau_d = 80$  ms, correspondant à une largeur spectrale légèrement inférieure à 1 Hertz.

## III-1-3) Modulation aléatoire de la fréquence de la source

Puisque la molécule CO présente un effet Stark très faible, nous n'avons pas pu utiliser la méthode de modulation par effet Stark décrite lors des expériences de spectroscopie résolue dans le temps. Nous avons dû effectuer une vraie modulation aléatoire de la fréquence de la source. Ceci se réalise en modulant la fréquence de référence du synchriminateur Schomandl ; en effet, la fréquence de la source stabilisée s'écrit :  $v_{\rm K} = 2Nv_{\rm F} + v_{\rm FIK}$  où  $v_{\rm FIK}$ , voisine de 30 MHz, est fournie par l'harmonique 3 d'une référence à 10 MHz délivrée par un oscillateur à fréquence variable.

Ainsi pour moduler la fréquence de la source  $v_{K}$  aléatoirement, il suffit de moduler cette référence à 10 MHz par une tension aléatoire définie parfaitement par sa valeur quadratique moyenne  $\sigma_{\Phi}^{\bullet}$  et son rythme q. Cette tension aléatoire est délivrée par le générateur de bruit Wavetek (modèle 132) présenté dans le second chapitre (§ II-2-2).

L'analyse préliminaire de la bande passante de l'oscillateur à fréquence variable a montré qu'on peut le moduler jusqu'à des rythmes bien supérieurs à 200 KHz, nettement plus grands que la valeur maximale de la largeur de bande de bruit  $q/2\pi = 46$  KHz. Enfin puisque cette référence modulée est envoyée sur le synchriminateur Schomandl, une dernière précaution à prendre est de savoir si ce dernier suit bien cette modulation . L'étude de la boucle de verrouillage de phase du synchriminateur décrite dans le paragraphe I-2-3 a montré que sa bande passante est de l'ordre de quelques centaines de KHz. Une étude expérimentale, qui a été effectuée en utilisant le résonateur comme discriminateur (cf §I-2-2) a confirmé que le synchriminateur Schomandl suivait bien une modulation de fréquence sinusoïdale jusqu'à des fréquences largement supérieures à 200 KHz.

## III-1-4) Détection

Des expériences préliminaires faites en utilisant une simple détection hétérodyne ont montré que la puissance reçue par le détecteur est très faible (estimée à quelques microwatts) ; en effet d'une part il est nécessaire d'atténuer fortement la puissance électromagnétique pour ne pas saturer le Lamb dip et d'autre part nous avons vu précédemment que le résonateur utilisé présente une perte d'insertion notable. Il est alors nécessaire d'utiliser pour obtenir des signaux ayant un rapport signal sur bruit convenable, un dispositif de détection relativement sensible, telle la détection superhétérodyne. Dans ce type de détection (56) , nous faisons battre dans un mélangeur non linéaire le signal source 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.

Ne disposant que d'un seul klystron de fréquence 115 GHz et aucun multiplicateur de fréquence n'étant disponible au laboratoire, nous avons utilisé un klystron de fréquence moitié  $v_{OL}$  voisine de 57,5 GHz (Varian modèle VRE 2103) dont le rayonnement est mélangé à celui issu du résonateur à l'aide d'un coupleur directif, de coefficient de couplage 10 dB (Baytron 3-15-300) : les deux ondes sont alors reçues sur un mélangeur non linéaire à diode Schottky (Varian de bande 50-75 GHz) qui restitue un signal de battement de fréquence intermédiaire  $v_{\rm K} = 2v_{\rm OL}$ . Compte tenu du rang d'harmonique 2N = 30 choisi pour stabiliser la fréquence du klystron source, il est possible de stabiliser l'oscillateur local à l'aide du même étalon de fréquence en utilisant un rang d'harmonique N  $\approx$  15 ; la fréquence de référence du synchriminateur Schomandl FDS-30 fixe dans ce cas, est ajustée pour amener la fréquence intermédiaire du battement superhétérodyne à 31 MHz, c'est-àdire au centre de la courbe de réponse de l'amplificateur placé à la suite du mélangeur (AIL : série 902, type 135, de bande passante 31 MHz + 1,5 MHz et de gain 600).

La détection du signal est ensuite assurée par un simple détecteur à diode. Enfin, une dernière amplification est effectuée par un amplificateur à haute impédance, de gain 700 à 15 000 et de bande passante 3 Hz - 10 KHz.

## III-1-5) Modulation de l'absorption et acquisition des signaux

La méthode la plus courante de modulation de l'absorption est obtenue par balayage de la fréquence du klystron source. Dans ce type d'expériences, les signaux correspondant à l'absorption (raie non saturée) et au Lamb dip apparaissent donc en superposition sur la courbe de transmission du résonateur.

Le balayage de la fréquence du klystron 115 GHz se fait comme dans le cas de la modulation aléatoire de la fréquence au niveau du synchriminateur Schomandl FDS-30 ; cette méthode consiste à balayer la référence à 10 MHz de l'oscillateur à fréquence variable à l'aide d'une rampe de tension périodique de période 12,5 ms. On effectuera alors le mélange entre cette rampe de tension et la tension de bruit pour balayer et moduler aléatoirement la référence à 10 MHz de l'oscillateur et donc la fréquence du klystron source.

Le signal est ensuite traité par un moyenneur numérique multicanaux (256 canaux) Schlumberger MN2V-256. Les signaux ainsi moyennés sont alors transcrits sur une table traçante et ensuite transférés dans des fichiers de données du calculateur HP-85 relié au moyenneur par une interface entrée/sortie (HP-GPID) : ils sont traités ultérieurement. III - 2) OBSERVATIONS DE L'INFLUENCE DU BRUIT DE FREQUENCE SUR LES

### SIGNAUX DE LAMB DIP

Pour mettre en évidence expérimentalement l'influence du bruit de fréquence de la source sur les signaux de Lamb dip, nous avons effectué une série d'expériences en faisant varier la durée de corrélation 1/q du bruit de fréquence pour plusieurs valeurs de l'amplitude quadratique moyenne des écarts de fréquence  $\sigma_{\Phi}^{\bullet}$ . Nous avons fait varier  $\sigma_{\Phi}^{\bullet}$  jusqu'à quelques fois la largeur du Lamb dip en l'absence de bruit de fréquence ; les valeurs de 1/q vont du temps de corrélation le plus court 3,5 µs à 150 µs. Toutes ces expériences ont été réalisées à la pression p  $\cong$  1 mTorr.

De cette façon, nous avons examiné comment varie la mi largeur à mi hauteur du Lamb dip en présence d'un bruit défini par ses deux paramètres  $\sigma_{h}^{\bullet}$  et 1/q.

## III-2-1) Détermination numérique

Une détermination exacte de la largeur du Lamb dip par un calcul numérique a été realisée sur le calculateur Hewlett Packard (HP-85) ; nous présentons brièvement la méthode utilisée. Nous avons vu que dans ce genre d'expériences, les signaux de Lamb dip apparaissent en superposition sur la forme de la raie non saturée et sur la courbe de transmission en fréquence du résonateur. Ainsi dans un premier temps afin d'obtenir la seule contribution du Lamb dip, nous avons éliminé les contributions de la courbe de transmission du résonateur et de la raie non saturée ; la détermination de la largeur du Lamb dip devient alors plus facile. Pour ce faire (57) , nous avons cherché une courbe qui passe au mieux par les points des deux extrêmités de l'enregistrement de part et d'autre du Lamb dip. L'expérience a montré qu'un polynôme de degré 5 ajustait très bien les contributions relatives à la courbe de transmission et à la raie non saturée. Un programme de régression polynomiale détermine alors les coefficients du polynôme en utilisant la méthode des moindres carrés.

Le nombre de canaux choisi de part et d'autre du signal de Lamb dip pour déterminer le polynôme est critique dans la détermination de la largeur du Lamb dip. En effet, un trop grand nombre de canaux (allant jusqu'aux pieds du Lamb dip) entraine alors une sous-estimation de la largeur et inversement un nombre de canaux insuffisant laisserait subsister une contribution partielle de la raie non saturée.

La figure III-3-a donne un exemple de cette méthode de régression polynomiale : la courbe en trait plein représente le signal total obtenu après acquisition, la courbe en trait pointillé représente le polynôme de degré 5 calculé à partir des canaux appartenant aux intervalles  $(M_1, M_2)$  et  $(M_3, M_4)$ .

Lorsque les contributions relatives à la raie non saturée et à la courbe de transmission du résonateur sont soustraites, nous obtenons uniquement la contribution du Lamb dip représentée sur la figure III-3-b. Ensuite dans un second temps, un calcul de moindres carrés ajuste le signal expérimental de Lamb dip sur la forme lorentzienne cidessous :

$$L(I) = \frac{x_1}{1 + \left(\frac{I - I_0}{W}\right)^2} + x_2 I + x_3$$

où I représente le numéro du canal correspondant.

Les paramètres à déterminer sont  $x_1$  l'amplitude du signal, I, le canal qui correspond à la fréquence centrale, et W la mi largeur à mi hauteur en nombre de canaux. Pour tenir compte d'une éventuelle contribution résiduelle de l'absorption linéaire, nous avons ajouté une correction linéaire de ligne de base d'équation  $x_2I + x_3$ , où  $x_2$  et  $x_3$  sont également des paramètres à déterminer. Connaissant les fréquences absolues des premier et dernier canaux, on peut en déduire la fréquence centrale et la mi largeur à mi hauteur en unité de fréquence.



FIGURE III.3 : Enregistrements de Lamb dip sans bruit de fréquence sur la transition  $J = 0 \Rightarrow J = 1$  de CO. Pression  $\approx 1$  mTorr. a) Le lamb dip est superposé au profil Doppler ; la courbe en pointillé représente le polynôme de degré 5 calculé à partir des canaux appartenant aux intervalles  $[M_1, M_2]$  et  $[M_3, M_4]$ . b) Le Lamb dip est soustrait du profil Doppler ; la courbe en trait gras représente le Lamb dip expérimental ; le signal expérimental a été ensuite ajusté sur une courbe de Lorentz (trait fin) par un calcul de moindres carrés (voir texte).

- 109 -

La mise en oeuvre de ce programme est similaire à celle utilisée pour les expériences de précession optique (cf.§ II-3-1).

La figure III-3-b donne le signal de Lamb dip ajusté sur la forme théorique de Lorentz (trait fin). Le calcul numérique a déterminé la mi largeur à mi hauteur du Lamb dip sans bruit de fréquence :  $\Delta v_{\rm HWHM}$  = 9,5 KHz avec une incertitude de 100 Hz correspondant à une erreur standard. Dans cette expérience à une pression P ≅ 1 mTorr, nous avons préféré travailler avec un paramètre de saturation important afin d'obtenir un rapport signal sur bruit satisfaisant, pour une durée d'intégration limitée (inférieure à 1 minute),quitte à avoir des Lamb dip de résolution moyenne. Notons toutefois que nous avons obtenu avec un paramètre de saturation beaucoup moins important des Lamb dip ayant une largeur spectrale de l'ordre de 3 KHz ; la largeur du Lamb dip est dans ce cas théoriquement limitée par les effets du temps de transit entre les plateaux du résonateur distants de 3 cm, ce qui correspond à un élargissement de l'ordre de 2 KHz (7, 40) ; la valeur plus importante observée est probablement causée par la dérive du quartz 15 MHz de l'étalon de fréquence MOS, la durée d'intégration étant dans ce cas de l'ordre de cinq minutes.

## III-2-2) Résultats expérimentaux

Ensuite nous avons modulé la fréquence de la source avec un bruit parfaitement défini par sa valeur quadratique moyenne  $\sigma_{\Phi}^{\bullet}$  et son rythme q. On observe alors un élargissement supplémentaire de la largeur spectrale du Lamb dip par rapport à celle du Lamb dip en l'absence de bruit de fréquence.

La figure III-4 représente le signal de Lamb dip affecté par un bruit de fréquence de valeur quadratique moyenne  $\sigma_{\varphi}^{\bullet} = 6$  KHz et de rythme q = 2,3 KHz ; ce qui correspond à une forme gaussienne du spectre du champ électromagnétique de la source de largeur  $\omega_d = \sqrt{2 \log 2} \sigma_{\varphi}^{\bullet}$ et semble donc être du même ordre de grandeur de la largeur spectrale  $\omega_d$ . Nous avons alors effectué de façon systématique une série d'expériences pour plusieurs valeurs de l'amplitude quadratique moyenne  $\sigma_{\varphi}^{\bullet}$ , en faisant varier la valeur du rythme q, à une pression p  $\cong$  1 mTorr.

- 110 -





FIGURE III.4 : Enregistrements de Lamb dip avec un bruit de fréquence de  $\sigma_{\phi}^{\star}$  = 6 KHz et de q = 2,3 KHz, la mi largeur du spectre du champ électromagnétique de la source vaut alors  $\omega_d$  = 7 KHz et est presque égale à l'élargissement supplémentaire du Lamb dip (~ 6,5 KHz) comparé au Lamb dip sans bruit (voir figure III.3).

Nous avons tracé dans un premier temps sur la figure III-5 en trait continu, la courbe théorique représentant les variations de la largeur  $\omega_d$  du spectre du champ électromagnétique de la source en fonction du rythme des changements de fréquence q pour une valeur quadratique moyenne des écarts de fréquence  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$  donnée. Ensuite dans un second temps, nous avons tracé sur la même figure l'élargissement supplémentaire  $\Delta \omega$  observé des largeurs spectrales des Lamb dip en fonction du rythme q pour diverses valeurs de  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$ . On observe que les points qui décrivent les mesures expérimentales effectuées se situent sur la courbe continue. On distingue les deux cas asymptotiques suivants :

i) Pour les faibles valeurs du rapport q/ $\sigma_{\phi}^{\bullet}$  (fluctuations de fréquence lentes), l'élargissement supplémentaire du Lamb dip est du même ordre de grandeur que la largeur du spectre du champ électromagnétique de la source qui vaut  $\omega_{d} = \sqrt{2 \log 2} \sigma_{\phi}^{\bullet}$ 

ii) Pour les fortes valeurs du rapport  $q/\sigma_{\varphi}^{\bullet}$  (fluctuations de fréquence rapides), l'élargissement supplémentaire du Lamb dip est égal à la largeur du spectre du champ de la source qui vaut  $\omega_{d} = \sigma_{d}^{\bullet^{2}}/q$ 

Pour terminer la présentation des résultats expérimentaux, on peut noter une différence importante de la forme de la raie non saturée sur les figures III-3a et III-4a ; ces deux enregistrements ont été obtenus dans les mêmes conditions sauf que le premier n'est pas affecté par le bruit de fréquence, alors que le second l'est. Nous conclurons le chapitre en proposant des voies possibles d'interprétation.

### III - 3) RETRECISSEMENT PAR LE MOUVEMENT - ANALOGIE

On peut donner un point de vue différent de la figure précédente III-5 qui illustre le phénomène d'affinement du spectre du champ électromagnétique de la source. Nous observons que pour une valeur quadratique moyenne des écarts de fréquence  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$  donnée, la largeur  $\omega_{d}^{\phantom{\dagger}}$  du champ électromagnétique de la source diminue lorsque le rythme q croît. Dans les expériences d'échos de photons, nous avons noté également que lorsque le rythme des changements de fréquence devient très élevé, l'atténuation des échos dû au bruit de fréquence diminue ; cet effet n'a pas pu être observé expérimentalement en raison des performances limitées du générateur de bruit.



ġΰ

113 ----

Ce phénomène pour lequel les changements de fréquence sont en quelque sorte moyennés à zéro, lorsque leur rythme devient élevé est à rapprocher du "phénomène de rétrécissement par le mouvement" de Dicke (19) .

Pour expliquer ce phénomène, Dicke (19) utilise le modèle simple d'un atome de fréquence dropre de transition v qui fait des aller et retour avec une vitesse v dans une boite de longueur a. Les collisions sur les parois de la boite inversent périodiquement le signe de la vitesse. On introduit le nombre de collisions par unité de temps v/a et la largeur Doppler  $\Delta v_D = \frac{v \cdot v}{c}$ . On distingue deux cas limites : — si la longueur d'onde  $\lambda$  est petite devant a ( $\lambda \ll a$ ), c'est-à-dire si le rythme des changements de fréquence est lent devant la largeur Doppler, alors pour un observateur fixe, le spectre par analyse de Fourier de la radiation émise par l'atome se compose de deux raies de fréquence

 $v + \frac{v \cdot v}{c}$ 

m par contre si la longueur d'onde  $\lambda$  est grande devant a ( $\lambda \gg a$ ), c'està-dire si le rythme des changements de fréquence est rapide devant la largeur Doppler, le spectre consiste en une seule raie très fine à la fréquence  $\nu$ , superposée sur un profil Doppler très large : c'est ce qu'on appelle le rétrécissement par le mouvement.

L'analogie du phénomène d'affinement du spectre du champ électromagnétique de la source observé expérimentalement avec phénomène de rétrécissement par le mouvement de Dicke est illustrée dans le tableau ci-dessous :



Galatry (53) calcule la forme des raies spectrales en prenant en compte simultanément l'effet Doppler et les collisions avec changement de vitesse. Il observe bien le rétrécissement lorsque le rythme des collisions avec changement de vitesse est grand devant la largeur Doppler kv (raie fine à la fréquence non perturbée sur un fond Doppler).

D'un point de vue expérimental, on peut citer par exemple Eng et al. (59) qui ont observé un rétrécissement par collision sur les raies d'absorption de la molécule  $H_2O$  à la longueur d'onde  $\lambda$  = 5,35 µm.

## III - 4) PREMIERE APPROCHE THEORIQUE DU LAMB DIP EN PRESENCE DE BRUIT

#### DE FREQUENCE

Dans ce paragraphe nous présentons une première approche théorique du Lamb dip en présence d'un bruit de fréquence. Nous définirons le modèle choisi (modèle du "Hole Burning") pour mener à bien le calcul du Lamb dip en présence de bruit de fréquence. Nous préciserons les conditions et les approximations que nous allons faire au cours de cette première étude et nous nous limiterons essentiellement à deux cas asymptotiques qui permettent de résoudre de façon quasi analytique le problème :

- le cas d'un bruit de fréquence rapide  $(1/q \rightarrow 0)$ - le cas d'un bruit de fréquence lent  $(1/q \rightarrow \infty)$ .

## III-4-1) Généralités

Pour cette première étude, nous allons étudier la forme du Lamb dip d'absorption saturée à l'ordre le plus bas auquel il se manifeste, à l'aide du modèle suivant (figure III-6) : un premier rayonnement faiblement saturant et dit de "pompe", d'amplitude E<sub>o</sub>, de pulsation moyenne  $\omega$ , se propage dans la direction z'oz à travers un gaz de systèmes à deux niveaux d'énergie d'élément de matrice de moment dipolaire  $\mu$  et de pulsation propre  $\omega_o$ ; un second rayonnement non saturant et dit de "sonde", issu du premier après réflexion sur un miroir faiblement réfléchissant, d'amplitude E', est envoyé dans la direction opposée, pour observer la réponse du gaz en fonction de la pulsation  $\omega$ . Afin de



ment.

FIGURE III.6 : Schéma de montage utilisé pour la mise en évidence du dip d'absorption saturée : un premier rayonnement ("pompe") se propage dans le direction z'oz ; un second rayonnement ("sonde") direction opposée, pour observer la réponse du gaz en fonction de la pulsation du rayonneissu du premier après réflexion sur un miroir faiblement réfléchissant est envoyé dans la



simplifier les calculs, nous allons utiliser le modèle du "Hole Burning" (voir par exemple (51, 60) ) : on suppose dans ce cas que le rayonnement de pompe est uniquement responsable d'une modification des populations qui est observée par l'intermédiaire du rayonnement de sonde. Cette approximation,qui consiste à négliger les effets de polarisation du gaz induit par le rayonnement de pompe,conduit au même résultat qu'un traitement rigoureux de l'interaction lorsqu'on calcule le signal de Lamb dip à l'ordre le plus bas (51): nous supposerons donc que ce traitement justifié dans le cas d'une onde parfaitement monochromatique, l'est également dans le cas d'une onde présentant des fluctuations de fréquence.

Comme précedemment, les instabilités  $\phi$  de la fréquence de source seront décrites par le spectre de puissance  $S_{\phi}^{\bullet}(\Omega)$  caractérisé par la valeur quadratique moyenne  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$  des écarts de fréquence et par le rythme q des changements de fréquence. Nous supposerons que le temps de corrélation 1/q de la source est grand devant le temps de transit  $\ell/c$  de l'onde dans la cellule de longueur  $\ell$ , c'est-à-dire la phase aléatoire  $\phi(t)$  est la même en tout point de la cellule.

D'autre part, nous utiliserons l'approximation du milieu optiquement fin.

Dans ces conditions, nous allons d'abord déterminer au 2ème ordre par rapport à  $E_0$  la différence de populations qui existe dans le gaz en présence de rayonnement de pompe ; puis nous calculerons le signal de sonde au 1er ordre en E' qui est observé en présence d'une telle différence de populations ; enfin, nous déterminerons l'allure du signal attendu dans le cas d'une source présentant des instabilités de fréquence soit lentes soit rapides.

### III-4-2) Différence de populations induite par le champ de pompe

Le calcul se fait simplement à l'aide des équations de Bloch Maxwell. Plutôt que d'utiliser le référentiel tournant à la fréquence instantanée  $\omega + \dot{\phi}$  comme dans le cas des phénomènes transitoires analysés

- 117 -

au chapitre II, il est préférable de se rapporter à la fréquence moyenne du champ. Le champ électrique de pompe s'écrit donc :

$$E(z,t) = R_{B} \left\{ \dot{E}(t) \exp \left[ i(\omega t - kz) \right] \right\}$$

avec  $\tilde{E}(t) = E_0 \exp\left[i\phi(t)\right]$ 

où  $\varphi(t)$  est la phase aléatoire du champ.

En désignant par n = n(v, $\alpha$ ,t) la différence de populations de la classe moléculaire de vitesse axiale v qui apparaît lorsque l'écart à la résonance est  $\alpha = \omega_{\alpha} - \omega$ , les équations de Bloch s'écrivent :

$$\frac{dn}{dt} + \Gamma(n-n_{o}) = -\frac{i\omega_{1}}{2\mu} \left[ \exp(-i\phi) \overset{\sim}{P} - \exp(i\phi) \overset{\sim}{P}^{*} \right]$$
(III.1)

$$\frac{dP}{dt} + \left[ (\Gamma - i(\alpha + k_V)) \right]_{P}^{N} = -i\mu\omega_1 \exp(i\phi)n \qquad (III.2)$$

où  $\omega_1 = \mu E_0/h$  est la pulsation de Rabi associée au champ de pompe

 $\Gamma$  est le taux de relaxation supposé identique pour les cohérences et les populations.n = n (v) la différence de populations à l'équilibre thermodynamique de la classe moléculaire considérée.

 $\tilde{P} = \tilde{P}(v, \alpha, t)$  est la polarisation induite sur la classe moléculaire considérée par le rayonnement de pompe agissant seul ; dans le cadre de nos approximations, nous négligeons évidemment l'influence du rayonnement de sonde sur cette polarisation.

Nous cherchons alors la modification des populations au second ordre en  $E_0$ . Ceci est réalisé par un traitement par approximation en utilisant la méthode itérative. On cherche d'abord la polarisation induite au premier ordre en  $E_0$  dans l'équation (III-2) en prenant n = n\_0.

La solution générale de l'équation III-2 est obtenue par la méthode de la variation de la constante, et s'écrit :

$$\begin{split} & \stackrel{\sim}{P}(v,\alpha,t) = -i\mu\omega_{1}n_{0}\int_{-\infty}^{t} d\theta \exp\left[-\Gamma(t-\theta)\right] \exp\left[i(\alpha+kv)(t-\theta)\right] \exp\left[i\phi(\theta) + A(-\infty)\exp\left\{-\left[\Gamma-i(\alpha+kv)\right]t\right\}\right] \end{split} \tag{III.3}$$

Comme le processus  $\phi(t)$  est stationnaire, c'est-à-dire indépendant de l'origine des temps, il est nécessaire que A(- $\infty$ ) = 0 pour que la solution  $P(v,\alpha,t)$  soit stationnaire.

On en déduit alors  $\stackrel{\sim}{P}(v,\alpha,t)$  qui s'écrit :

$$\sum_{P(v,\alpha,t)}^{n} = -i\mu\omega_1 n_0 \int_{-\infty}^{t} d\theta \exp\left[-\Gamma(t-\theta)\right] \exp\left[i(\alpha+kv)(t-\theta)\right] \exp\left[i\phi(\theta)\right]$$
(III.4)

L'équation (III.1) devient en injectant (III.4) :

$$\frac{dn}{dt} + \Gamma(n-n_0) = -\omega_1^2 n_0 \int_{-\infty}^{t} d\theta \exp\left[-\Gamma(t-\theta)\right] \cos\left[(\alpha+kv)(t-\theta) - \phi(t) + \phi(\theta)\right]$$
(III.5)

La solution de l'équation (III.5) est obtenue en utilisant la même démarche que pour la résolution de l'équation (III.2), et donne la différence de populations au second ordre en E<sub>n</sub> :

$$n(v, \alpha, t) = n_{\alpha} \left\{ 1 - \omega_{1}^{2} \int_{-\infty}^{t} d\theta \exp \left[ -\Gamma(t - \theta) \right] \right\}$$

$$\times \int_{-\infty}^{\theta} d\theta' \exp \left[ -\Gamma(\theta - \theta') \right] \cos \left[ (\alpha + kv) (\theta - \theta') - \phi(\theta) + \phi(\theta') \right] \right\}$$
(III.6)

## III-4-3) Signal de sonde

En utilisant également le référentiel tournant à la fréquence moyenne  $\omega$  du champ, le champ électrique de sonde s'écrit :

$$E'(z,t) = \operatorname{Re}\left\{ \overset{\sim}{E}'(t) \exp\left[i(\omega t + kz)\right] \right\}$$
  
avec  $\overset{\sim}{E}'(t) = E'_{o} \exp\left[i\phi(t)\right]$ 

Le signal de sonde d'obtient à l'aide des équations de Bloch Maxwell : comme il n'y a pas de modification des populations due à ce rayonnement,elles se réduisent à :

$$\frac{d\tilde{P}'}{dt} + \left[\Gamma - i(\alpha - kv)\right] \tilde{P}' = -i\mu\omega'_{1} \exp(i\phi)n \qquad (III.7)$$

$$S' = -i\left[\tilde{P}'\tilde{E}'^{*} - \tilde{P}'^{*}\tilde{E}'\right] \qquad (III.8)$$

où  $\omega'_1 = \mu E'_0/h$  est la pulsation de Rabi associée au champ de sonde

 $n = n(v, \alpha, t)$  est la différence des populations induite par le champ de pompe (cf. ég. III.6)

S' = S'(v, $\alpha$ ,t) est proportionnel à la puissance du rayonnement de sonde absorbée par la classe moléculaire considérée, et  $\overset{\sim}{P} = \overset{\sim}{P}'(v,\alpha,t)$ est la polarisation induite correspondante : dans le cas de l'approximation du "Hole Burning" utilisée, on considère donc que cette polarisation n'est pas affectée du tout par le champ de pompe, et est indépendante de la polarisation  $\overset{\sim}{P}$  calculée dans le paragraphe précédent. On résoud alors les équations du champ de sonde : la solution de l'équation (III.7) s'obtient facilement, en utilisant la même procédure que pour le calcul de  $\overset{\sim}{P}(v,\alpha,t)$  (éq. III.4)

$$\sum_{P'(v,\alpha,t)=-i\mu\omega_{1}'}^{t} \int_{-\infty}^{t} d\theta \ n(v,\alpha,\theta) \exp\left[-\Gamma(t-\theta)\right] \exp\left[i(\alpha-kv)(t-\theta)+i\phi(\theta)\right]$$
(III.9)

L'équation (III.8) devient alors en injectant (III.9) :

- -

$$S'(v,\alpha,t) = -2\mu E'_{\alpha}\omega'_{1}\int_{-\infty}^{t} d\theta \ n(v,\alpha,\theta) \exp\left[-\Gamma(t-\theta)\right] \cos\left[(\alpha-kv)(t-\theta)-\phi(t)+\phi(\theta)\right]$$
(III.10)

### III-4-4) Résolution exacte des équations

Nous allons résoudre exactement les équations sous forme intégrale : en injectant dans l'équation (III.10), la différence de populations  $n(v,\alpha,t)$  donnée par l'équation (III.6). S'(v,\alpha,t) s'écrit alors :

$$S'(v,\alpha,t) = -2\mu E_{0}'\omega_{1}'n_{0} \left\{ \left[ \int_{-\infty}^{t} d\theta \exp\left[-\Gamma(t-\theta)\right] \cos\left[(\alpha-kv)(t-\theta)-\phi(t)+\phi(\theta)\right] \right] - \omega_{1}^{2} \int_{-\infty}^{t} d\theta \exp\left[-\Gamma(t-\theta)\right] \cos\left[(\alpha-kv)(t-\theta)-\phi(t)+\phi(\theta)\right] - \int_{-\infty}^{\theta} d\theta' \exp\left[-\Gamma(\theta-\theta')\right] - \int_{-\infty}^{\theta'} d\theta' \exp\left[-\Gamma(\theta-\theta')\right] \cos\left[(\alpha+kv)(\theta'-\theta'')-\phi(\theta')+\phi(\theta'')\right] \right\} (III.11)$$

Le premier terme de S'(v, $\alpha$ ,t) correspond à la contribution d'une classe moléculaire à la raie non saturée, le second terme à la contribution correspondante au Lamb dip recherché.

En l'absence de bruit de fréquence (les termes en  $\phi$  sont alors nuls), on peut vérifier que le Lamb dip observé est une lorentzienne de mi largeur à mi hauteur  $\Gamma$  (51). On remarque dans l'équation (III-11) la dépendance de S'(v, $\alpha$ ,t) avec le temps t ; celà vient du fait que la phase  $\phi$  est un processus aléatoire dépendant du temps. Nous allons maintenant, dans un premier temps intégrer S'(v, $\alpha$ ,t) sur les vitesses v, puis dans un second temps, nous effectuerons la moyenne temporelle de S'( $\alpha$ ,t)

a) On effectue au préalable les changements de variables dans l'équation (III-11), d'une part dans l'intégrale simple :  $\zeta = t - \theta$ , et d'autre part dans l'intégrale triple :

 $\zeta = t - \theta + \theta' - \theta''$ ;  $\eta = \theta - \theta'$ ;  $\xi = t - \theta - \theta' + \theta''$ 

et on obtient alors :

$$S'(v, \alpha, t) = -2\mu E_{0}' \omega_{1}' n_{0} \left\{ \int_{0}^{\infty} d\zeta \exp\left[-\Gamma\zeta\right] \cos\left[(\alpha - kv)\zeta - \delta^{\varphi}(\zeta)\right] \right]$$
$$- \omega_{1}^{2} \int_{0}^{\infty} d\zeta \exp\left[-\Gamma\zeta\right] \int_{0}^{\infty} d\eta \exp\left[-\Gamma\eta\right] \int_{-\zeta}^{\zeta} d\xi$$
$$\cdot \left[ \cos\left[\alpha\zeta - kv\xi - \delta^{\varphi'}(\zeta, \eta, \xi)\right] \right]$$
$$+ \cos\left[\alpha\xi - kv\zeta - \delta^{\varphi''}(\zeta, \eta, \xi)\right] \right\}$$

(III.12)

```
a\dot{u}: \delta\varphi(\zeta) = \varphi(t) - \varphi(\theta)
```

$$\delta \varphi'(\zeta,\eta,\xi) = \phi(t) - \phi(\theta) + \phi(\theta') - \phi(\theta'')$$
  
$$\delta \varphi''(\zeta,\eta,\xi) = \phi(t) - \phi(\theta) - \phi(\theta') + \phi(\theta'')$$

b) On intègre ensuite l'équation (III.12) sur toutes les vitesses v :

$$S'(\alpha,t) = \int_{-\infty}^{+\infty} S'(v,\alpha,t) dv$$

la différence de populations d'une classe moléculaire de vitesse v dans le cas d'une distribution maxwellienne des vitesses est donnée par :

$$n_{o}(v) = \frac{N_{o} \pi^{-1/2}}{v_{o}} \exp\left[-\left(\frac{v}{v_{o}}\right)^{2}\right]$$

où N est la différence de population totale et v , la vitesse la plus probable.

On obtient :

$$S'(\alpha, t) = -2\mu E'_{\alpha} \omega'_{1} N_{\alpha} \left\{ \int_{0}^{\infty} d\zeta \exp(-\Gamma\zeta) \exp\left(-\frac{k^{2} v_{\alpha}^{2}}{4} \zeta^{2}\right) \cos\left[\alpha \zeta - \delta\varphi(\zeta)\right] \right]$$
$$- \omega_{1}^{2} \int_{0}^{\infty} d\zeta \exp(-\Gamma\zeta) \int_{0}^{\infty} d\eta \exp(-\Gamma_{\eta}) \int_{-\zeta}^{\zeta} d\zeta$$
$$\cdot \left[ \exp\left(-\frac{k^{2} v_{\alpha}^{2}}{4} \xi^{2}\right) \cos\left[\alpha \zeta - \delta\varphi'(\zeta, \eta, \zeta)\right] \right]$$
$$+ \exp\left(-\frac{k^{2} v_{\alpha}^{2}}{4} \zeta^{2}\right) \cos\left[\alpha \xi - \delta\varphi''(\zeta, \eta, \zeta)\right] \right\}$$
(III.13)

Dans le cas d'un effet Doppler infini (42) , c'est-à-dire lorsque kv<sub>o</sub> est très grand devant la largeur homogène  $\Gamma$ , l'écart à la résonance  $\alpha$  et les paramètres ( $\sigma_{\phi}^{*},q$ ) définissant le bruit, on obtient alors :

$$S'(\alpha,t) = -2\mu E'_{0}\omega'_{1}N_{0} \left\{ \int_{0}^{\infty} d\zeta \exp\left(-\frac{\kappa^{2}v_{0}^{2}}{4}\zeta^{2}\right) - \omega_{1}^{2} \int_{0}^{\infty} d\zeta \exp(-\Gamma\zeta) \int_{0}^{\infty} d\eta \exp(-\Gamma\eta) \cos\left[\alpha\zeta - \delta\varphi'(\zeta,\eta,\xi=0)\right] \int_{-\zeta}^{\zeta} d\xi \exp\left(-\frac{\kappa^{2}v_{0}^{2}}{4}\xi^{2}\right) - \omega_{1}^{2} \int_{0}^{\infty} d\zeta \exp\left(-\frac{\kappa^{2}v_{0}^{2}}{4}\zeta^{2}\right) \int_{0}^{\infty} d\eta \exp(-\Gamma\eta) \int_{\zeta}^{\zeta} d\xi \left\{ (III.13') \right\}$$

Les deux premiers termes sont en  $1/kv_0$ , le troisième terme est en  $1/k^2v_0^2$ ; si  $kv_0 \rightarrow \infty$ , il vient alors en négligeant le troisième terme en  $1/k^2v_0^2$ :

$$S'(\alpha,t) = -2\mu E_{0}' \omega_{1}' N_{0} \left\{ \frac{\sqrt{\pi}}{kv_{0}} \right\} 1 - 2\omega_{1}^{2} \int_{0}^{\infty} d\zeta \exp(-\Gamma\zeta) \int_{0}^{\infty} d\eta \exp(-\Gamma\eta) \cos\left[\alpha\zeta - \delta\varphi'(\zeta,\eta,\xi=0)\right] \right\}$$
(III.14)

où  $\delta \varphi'(\zeta,\eta,\xi=0)$  est une fonction dépendant du temps S'( $\alpha$ ,t) représente le signal avec une constante de temps de détection nulle.

c) Puis on effectue la moyenne temporelle de S' $(\alpha, t)$  dans le cas d'une constante de temps de détection finie. On suppose que le processus est ergodique, dans ce cas, la valeur de la moyenne temporelle est égale à celle de la moyenne statistique.

Compte tenu du caractère gaussien de la variable aléatoire  $\delta^{\varphi^{\prime}}$  , l'équation (III.14) devient :

$$S'(\alpha) = -2\mu E_{0}'\omega_{1}' \frac{N_{0}\sqrt{\pi}}{kv_{0}} \left\{ 1 - \frac{2\omega_{1}^{2}}{\sqrt{2}} \int_{0}^{\infty} d\zeta \exp(-\Gamma\zeta) \int_{0}^{\infty} d\eta \exp(-\Gamma\eta)\cos(\alpha\zeta)\exp\left(-\frac{\langle\delta\varphi'^{2}\rangle}{2}\right) \right\} \quad (III.15)$$

$$D\dot{\omega} \langle \delta\varphi'^{2}\rangle = \langle \left[\phi(t) - \phi(\theta) + \phi(\theta') - \phi(\theta'')\right]^{2} \rangle$$

- 123 -

Ceci se calcule par des procédés analogues à ceux déjà rencontrés en utilisant la fonction d'autocorrélation R\_{d}^{\bullet} (cf. § I.1.2.3) ; on trouve :

$$\langle \delta \varphi'^2 \rangle = \sigma_{\varphi}^2(t-\theta) + \sigma_{\varphi}^2(\theta'-\theta'') + 2 \int_{\theta}^{t} d\theta_1 \int_{\theta''}^{\theta'} d\theta_2 R_{\varphi}^{\bullet}(\theta_1-\theta_2)$$

#### d) Commentaires

L'équation (III.15) écrite sous forme intégrale est tout à fait générale ; nous allons étudier les deux cas asymptotiques qui donnent une solution analytique exacte : le cas d'un bruit de fréquence lent et le cas d'un bruit de fréquence rapide ; la forme exacte de S $\stackrel{\bullet}{}$  n'a pas d'importance.

i) Dans le cas d'un bruit de fréquence lent, c'est-à-dire pour un temps de corrélation 1/q très long, R est une constante égale à  $\sigma_{\phi}^2$  et  $\sigma_{\phi}^2(t) = \sigma_{\phi}^2 t^2$ ;  $\langle \delta^{\varphi} \rangle^2 \rangle$  s'écrit donc :

$$\langle \delta \varphi' \rangle^2 = \sigma_{\phi}^2 \left[ (t - \theta) + (\theta' - \theta'') \right]^2 = \sigma_{\phi}^2 \zeta^2$$

l'équation (III.15) s'écrit alors :

$$S'(\alpha) = -2\mu E'_{0}\omega'_{1} \frac{N_{0}\sqrt{\pi}}{kv_{0}} \left\{ 1 - \frac{2\omega_{1}^{2}}{\Gamma} \int_{0}^{\infty} d\zeta \exp(-\Gamma\zeta) \exp\left(-\frac{\sigma_{\phi}^{2}\zeta^{2}}{2}\right) \cos \alpha\zeta \right\}$$
(III.16)

Le signal de Lamb dip est donc le produit de convolution d'une lorentzienne de largeur  $\Gamma$  avec le spectre du champ électromagnétique de la source qui est dans le cas d'un bruit de fréquence lent, une gaussienne de largeur  $\sqrt{2\log 2} \sigma_{\phi}^{\bullet}$ . Le Lamb dip a donc une forme de Voigt.

On peut expliquer ce résultat de la façon suivante : la fréquence du champ électromagnétique de la source varie lentement  $(1/q \rightarrow \infty)$ , alors que la molécule subit des collisions à un rythme  $\Gamma$  beaucoup plus rapide ; on peut donc représenter le résultat de l'interaction du gaz avec un tel rayonnement comme la moyenne statistique des signaux qui seraient observés avec des champs de fréquences différentes et dont les fréquences  $\omega + \phi$  suivent une distribution gaussienne de valeur quadratique moyenne  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$ . La forme du dip en présence d'un tel bruit est donc le produit de convolution d'une gaussienne de largeur  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$  avec une lorentzienne de largeur  $\Gamma$ . Lorsque les valeurs de  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$  sont du même ordre de grandeur que la largeur homogène  $\Gamma$ , on peut faire l'approximation suivante (61) : la largeur du profil de Voigt est la racine carrée de la somme quadratique de ces deux largeurs  $\sigma_{\phi}^{\bullet}$  et  $\Gamma$ .

Nous avons vu que le résultat expérimental est plus proche d'une simple somme des 2 largeurs. Ce désaccord peut provenir du fait que l'approximation d'un effet Doppler infini n'est pas vérifiée dans notre expérience, ou d'une saturation résiduelle des Lamb dip.

**ii)** Dans le cas d'un bruit de fréquence rapide, c'est-à-dire pour un temps de corrélation 1/q très court,  $\int_{\theta}^{t} d\theta_{1} \int_{\theta}^{\theta} d\theta_{2} = R_{\phi}^{*}(\theta_{1}-\theta_{2})$  tend vers 0 et  $\sigma_{\phi}^{2}(t) = S_{\phi}^{*}(0)t$ ;  $\langle \delta \varphi'^{2} \rangle$  s'écrit alors :

$$\langle \delta \varphi'^2 \rangle = S_{\phi}^{\bullet}(0)(t-\theta+\theta'-\theta'') = S_{\phi}^{\bullet}(0) \zeta$$

L'équation (III.15) s'écrit alors :

$$S'(\alpha) = -2\mu E'_{o}\omega'_{1} \frac{N_{o}\sqrt{\pi}}{kv_{o}} \left[1 - \frac{N_{o}\sqrt{\pi}}{kv_{o}}\right]$$

$$\frac{2\omega_1^2}{\Gamma} \int_0^\infty d\zeta \exp(-\Gamma\zeta) \exp\left(-\frac{S_{\phi}(0)\zeta}{2}\right) \cos \alpha\zeta \right] \qquad (III.17)$$

Le signal de Lamb dip est donc une lorentzienne de largeur :

$$\Gamma + S_{\phi}(0)/2 = \Gamma + \omega_d$$

On se trouve dans le cas où 1/q est très faible ; c'est le modèle du champ " $\delta$  corrélé" fréquemment utilisé dans les théories des lasers en impulsions (voir par exemple Wodkiewicz (4)).

Dans cette limite, pour les régimes linéaires, la largeur du spectre du champ électromagnétique de la source s'ajoute linéairement à la largeur homogène  $\Gamma$  de la transition.

Bien que la Lamb dip soit un phénomène non linéaire, on obtient le même résultat caractéristique des régimes linéaires : la largeur du Lamb dip, en présence d'un bruit de fréquence rapide est la somme de la largeur homogène  $\Gamma$  et de la largeur du spectre du champ de la source, ce qui est en bon accord avec les observations expérimentales.

## CONCLUSION

Nous avons traité théoriquement l'influence du bruit de fréquence sur les signaux de Lamb dip ; seuls les deux cas asymptotiques (bruit de fréquence rapide et lent) ont été analysés dans cette première approche et nous avons su donner la forme analytique du dip en présence d'un tel bruit de fréquence : pour ces deux cas, la forme du dip est simplement la convolution d'une lorentzienne de largeur  $\Gamma$  avec le spectre du champ électromagnétique de la source. Les résultats expérimentaux présentés antérieurement confirment ces premiers résultats théoriques.

Il reste donc à généraliser cette étude à un bruit de fréquence tout à fait quelconque, c'est-à-dire lorsque le rythme des changements de fréquence q est quelconque devant le taux  $\Gamma$  des collisions moléculaires. Seul un traitement numérique permettra la généralisation de cette étude.

Dans cette première étude théorique nous avons utilisé le modèle du "hole Burning" avec les approximations correspondantes. On a supposé que ce traitement reste valable dans le cas d'une onde présentant un bruit de fréquence. Il reste donc à justifier la validité de ce traitement dans ce cas là.

Notons également que le modèle du "hole burning" utilise un champ de sonde de faible intensité. Or dans notre cas, où l'on travaille en ondes stationnaires, les 2 ondes (pompe et sonde) sont d'égale intensité. Il est donc à vérifier que celà n'affecte pas les résultats établis.

- 126 -

Celà peut être une des interprétations possibles de la différence de la forme de la raie non saturée en présence et en absence de bruit de fréquence, observée précédemment. D'autres peuvent être données comme par exemple :

- l'effet Doppler est effectivement fini, alors que dans nos calculs nous avons supposé un effet Doppler infini.

- la bande passante du résonateur est de valeur finie.

- la fréquence propre du résonateur ne coïncide pas exactement avec la fréquence du Lamb-dip.

# CONCLUSION

- 129 -

Nous avons étudié au cours de ce travail l'influence du bruit de fréquence de source sur des expériences de spectroscopie à haute résolution.

Un contrôle correct du bruit de fréquence qui affecte la source, a permis d'étudier de façon systématique son influence d'une part sur des expériences de spectroscopie résolue dans le temps, d'autre part sur des expériences de spectroscopie d'absorption saturée : cette étude a montré qu'une connaissance parfaite de tous les paramètres qui caractérisent les instabilités de fréquence est nécessaire pour expliquer les phénomènes observés puisque deux sources équivalentes en régime linéaire peuvent conduire à des résultats tout à fait différents en régime non linéaire.

Dans les expériences de spectroscopie résolue dans le temps (précession optique et échos de photons à plusieurs impulsions) nous avons observé l'amortissement supplémentaire dû au bruit de fréquence dans le cas d'un moyennage sur un grand nombre de séquences. L'étude de cet amortissement à court et à long termes a mis clairement en évidence les deux limites réversible et irréversible que l'on rencontre dans la théorie du mouvement Brownien. Ces expériences ont montré dans la límite réversible l'intérêt des expériences d'échos de photons à plusieurs impulsions qui permettent de s'affranchir des fluctuations lentes de la fréquence du champ électromagnétique de la source : il est donc possible de réaliser des expériences de spectroscopie à haute résolution par la méthode des échos de photons, lorsque nous sommes en présence de sources présentant des fluctuations de fréquence lentes. Par contre lorsque la source présente des fluctuations de fréquence rapides, le bruit de fréquence détruit de façon irréversible la polarisation macroscopique observée.

Dans les expériences de spectroscopie d'absorption saturée, bien que le Lamb dip soit un phénomène non linéaire, les résultats obtenus dans les cas d'instabilités de fréquence lentes ou rapides sont identiques à ceux attendus en régime linéaire ; une étude théorique sommaire a confirmé que dans ces deux cas, la forme du Lamb dip est en effet la convolution de la forme de la transition homogène et de celle du spectre du champ électromagnétique de la source. Il reste donc à généraliser cette première étude au cas du bruit de fréquence tout à fait quelconque, c'est à dire lorsque le rythme des changements de fréquence est du même ordre de grandeur que le rythme des collisions moléculaires.

## RÉFÉRENCES

- J. MOSTOWSKI, S. STENHOLMPhysica Scripta, 26, 211-216 (1982).
- (3) Troisième Symposium sur les étalons de fréquence et la Métrologie
   Journal de Physique Colloque C8 Aussois (France) (1981).
- (4) K. WODKIEWICZ Phys.Rev. <u>A19</u>, 1686-1696 (1979).
- (5) F. ROHART, B. MACKE
  Appl.Phys. B26, 23-30 (1981).
- (6) S.L. JOHNSON, B.H. SMITH, D.A. CALDER Proc.IEEE, 54, 258-265 (1966).
- (7) F. ROHART Thèse de Doctorat d'Etat, Lille (1981).
- (8) W.E. LAMB
   Theory of optical Masers (377-381)
   Optique et électronique quantiques, édité par C. Dewitt,
   A. Blandin et C. Cohen Tannoudji
   Gordon et Breach, New-York (1965).
- (9) J. RUTMAN
  Proc.IEEE, <u>66</u>, 1048-1075 (1978).
- (10) J. RUTMAN
  Thèse de Doctorat d'Etat, Paris VI (1972)
  Editée par O.N.E.R.A.

- (11) E. BOILEAU, B. PICINBONO
  IEEE, Trans.Instrum. and Meas. 25, 66-75 (1976).
- (12) A. PAPOULIS Probability, Random Variables and Stochastic Processes Mac Graw Hill, New-York (1965).
- (13) J. STERN, J. DE BARBEYRAC, R. POGGI
   Méthodes pratiques d'étude des fonctions aléatoires
   Dunod, Paris (1967).
- (14) P. AVAN, C. COHEN TANNOUDJI
  J. Phys. B(Atom.Mol.Phys.) <u>10</u>, 155-170 (1977)
- (15) B. PICINBONO C.R.Acad.Sc. Paris, <u>271</u>B, 661-664 (1970).
- (16) D.W. ALLAN Proc.IEEE, <u>54</u>, 221-230 (1966).
- (17) A. ANGOT
  Compléments de Mathématiques, Paris (1957).
- (18) P.W. ANDERSON, P.R. WEISS Rev.Mod.Phys. <u>25</u>, 269-276 (1953).
- (19) R.H. DICKE Phys.Rev. 89, 472-473 (1953).
- (20) J.J. GAGNEPAIN Congrès "Les oscillateurs microondes", Limoges (1983), non publié.
- (21) J.A. BARNES et al IEEE. Trans.Instrum. and Meas. <u>20</u>, 105-120 (1971)
- (22) F. HARTMAN, F. STOECKELJ. Physique C1, 32-36 (1978).

(24) Catalogue Hewlett Packard (1982).

Opt.Comm. 3, 368-383 (1980).

- (25) J.R. ASHLEY, C.B. SEARLES, F.M. PALKA IEEE.Trans.Microwave theory and Tech. 16, 753-760 (1968).
- (26) P.A. ROLLAND, M.R. FRISCOURT, E. PLAYEZ, G. SALMER, E. CONSTANT Rapport de contrat DRET n°79/357, Lille (1982).
- (27) J. LEGRAND, B. SEGARD, A. KROSTA, B. MACKE Rev.Sci.Instrum., 49, 526-530 (1978).
- (28) A. SPATARU
  Théorie de la transmission de l'information, Tome I
  Masson, Paris (1970).
- (29) F.M. GARDNER
   Phase lock techniques, New-York Wiley (1966).
- (30) C. GUDEMAN Thèse, Université de Wisconsin, Madison (1982).
- (31) L.S. CUTLER, C.L. SEARLE Proc.IEEE <u>54</u>, 136-154 (1966).
- (32) N.A. KURNIT, I.D. ABELLA, S.R. HARTMAN Phys.Rev.Lett. <u>13</u>, 567-568 (1964).
- (33) J.L. JENKINS, P.E. WAGNER
  Appl.Phys.Lett. <u>13</u>, 308-309 (1968).
- (34) B. MACKE J.Mol.Struct. 97, 203-214 (1983).
- (35) E.L. HAHN Phys.Rev. 80, 580-594 (1950).

- (36) H.Y. CARR, E.M. PURCELL Phys.Rev. <u>94</u>, 630-638 (1954).
- (38) R.G. DE VOE, A. SZABO, S.C. RAND, R.G. BREWER Phys.Rev.Lett. 42, 1560-1563 (1979).
- (39) R.M. MAC FARLANE, R.M. SHELBY, R.L. SHOEMAKER Phys.Rev.Lett. 43, 1726-1730 (1979).
- (40) C.J. BORDE, J.L. HALL, C.V. KUNASZ, D.G. HUMMER Phys.Rev. A14, 236-263 (1976).
- (41) P. GLORIEUX
  Thèse de Doctorat d'Etat, Lille (1976).
- (42) C.L. TANG, B.D. SILVERMAN
  Physics of quantum Electronics (280-293)
  Edité par P.L. Kelly, P.E. Tannenwald
  Mac Graw Hill, New-York (1966).
- (43) J. MOSTOWSKI, K. RZAZEWSKIZ. Physik.B.Condensed Matter <u>39</u>, 183-185 (1980).

(44) A. SZABO, M. KROLL Opt.Lett. <u>2</u>, 10-12 (1978).

- (45) Notice du générateur Wavetek Model 132 VCG/noise Generator
- (46) P.A. STEINER, W. GORDY
  J.Mol.Spect. <u>21</u>, 291-301 (1966).
- (47) F. ROHART, B. MACKE Z.Naturforsch 36a, 929-936 (1981).

(48) A. ABRAGAM Les phénomènes liés à la résonance magnétique, tomme II Centre d'études nucléaires de Saclay (1955-6), non publié.

- (49) P.R. BERMAN, J.M. LEVY, R.G. BREWER
  Phys.Rev. A11, 1668-1688 (1975).
- (50) A. FLUSBERG Opt.Comm. 29, 123-125 (1979).
- (51) V.S. LETOKHOV, V.P. CHEBOTAYEV Non linear Laser Spectroscopy (74-79) Edité par D.L. Mac Adam, Springer Verlag, Berlin (1977).
- (53) W.F. KOLBE, H. BUSCHER, B. LESKOVAR J.Quant.Spectrosc.Radiat.Transfer 18, 47-64 (1977).
- (54) N. MONNANTEUIL, J.M. COLMONT Communication privée.
- (55) A. KROSTA
  Thèse de 3ème Cycle, Lille (1977).
- (56) J.M. CARPENTIER Thèse de 3ème Cycle, Lille (1979).
- (57) J. BURIE Communication privée
- (58) L. GALATRY
  Phys.Rev. <u>122</u>, 1218-1223 (1961).
- (59) R.S. ENG, A.R. CALAWA, T.C. HARMAN, P.L. KELLEY, A. JAVAN Appl.Phys.Lett. <u>21</u>, 303-305 (1972).

(60) B. MACKE Cours de DEA, Lille (1981), non publié.

- (61) J.J. OLIVERO, R.L. LONGBOTHUM J.Quant.Spectroc.Radiat.Transfer. <u>17</u>, 233-236 (1977).
- (62) E. HANAMURA
  J.Phys.Soc. Japan <u>52</u>, 2258-2266 (1983).



#### Mots clefs :

pureté spectrale : bruit de modulation de fréquence optique quantique : échos de photons - Lamb dip

### Résumé :

Dans les expériences de spectroscopie à haute résolution, les signaux physiques présentent ou un temps de cohérence long (échos de photons) ou une largeur spectrale étroite (Lamb dip) la haute résolution recherchée implique donc une bonne pureté spectrale du champ électromagnétique de la source, et on peut alors se demander quelle est l'influence exacte d'une source qui présente des instabilités de fréquence. Ceci a été envisagé d'une part dans le cas d'expériences de spectroscopie résolue dans le temps, d'autre part dans le cas d'expériences d'absorption saturée.

Cette étude a été entreprise en utilisant des sources quasiparfaites dont on module aléatoirement la fréquence, ce qui permet de caractériser la valeur quadratique moyenne des écarts de fréquence et le rythme des changements de fréquence : on montre que ces deux paramètres sont nécessaires pour une description complète du bruit de fréquence.

Alors que dans les expériences d'absorption saturée la résolution est toujours fixée par la largeur du spectre du champ de la source, les expériences de régimes transitoires présentent des comportements différents selon la valeur du rythme des changements de fréquence. En particulier, la méthode des échos de photons permet de s'affranchir du bruit de fréquence de source lorsque sa durée de corrélation est longue devant le temps de relaxation de la transition.