



INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY
UNITED NATIONS EDUCATIONAL, SCIENTIFIC AND CULTURAL ORGANIZATION



INTERNATIONAL CENTRE FOR THEORETICAL PHYSICS

34100 TRIESTE (ITALY) - P.O.B. 586 - MIRAMARE - STRADA COSTIERA 11 - TELEPHONES: 224281/2/3/4/5/6
CABLE: CENTRATOM - TELEX 46392 ICTP



SMR-30/ 33

WINTER COLLEGE ON ATOMIC AND MOLECULAR PHYSICS

26 January - 18 March 1977

ELECTRONIQUE QUANTIQUE.- Sur l'effet de recul en
spectroscopie d'absorption saturée.

C. BORDE

(Taken from C.R.Acad.Sc., Paris, t.283 (27.9.1976))

These are preliminary lecture notes intended for participants only.
Extra copies are available outside the Publications Office (T-floor) or
from room 112.



ELECTRONIQUE QUANTIQUE. — Sur l'effet de recul en spectroscopie d'absorption saturée. Note (*) de M. Christian Bordé, présentée par M. Alfred Kastler.

On a obtenu une forme de raie analytique tenant compte de l'effet de recul pour la spectroscopie d'absorption saturée. Cette expression est valable au premier ordre par rapport au champ sonde et suppose de plus les ondes planes et la largeur Doppler infinie. Elle permet de rendre compte du rapprochement apparent des composantes du doublet d'effet de recul que l'on observe expérimentalement en fonction de l'intensité lumineuse.

La conservation de la quantité de mouvement entre la lumière et les molécules entraîne le dédoublement des raies d'absorption saturée [(1), (2)]. Cette prédiction a pu être vérifiée expérimentalement [(3), (4)] dans le cas du méthane à la longueur d'onde 3,39 μ . L'importance de ce phénomène pour l'exactitude et la reproductibilité des étalons optiques de fréquence a déjà stimulé plusieurs études théoriques [(5), (6), (7)]. Nous souhaitons présenter dans cette Note une forme de raie analytique pour le doublet d'effet de recul, valable pour une intensité quelconque de l'onde de saturation mais seulement au premier ordre par rapport à celle de l'onde sonde. Nous représenterons les deux champs électriques par les amplitudes complexes

$$E_0^{\pm} \exp [i(\omega t \mp kz + \varphi^{\pm})],$$

où l'indice — sera relatif à l'onde sonde.

Nous écrivons les cohérences optiques entre les états d'énergie-impulsion (E_x , M_x) et (E_y , $M_y \pm \hbar k$) sous la forme

$$\rho_{xy}(t, M_y, M_x \pm \hbar k) = \rho_{0x \pm}(v_x) \exp [-i(\omega t \pm kz + \varphi^{\pm})].$$

Nous noterons par $\Omega^{\pm} = \mu_{ab} E_0^{\pm} / 2\hbar$ les pulsations de Rabi correspondant au moment de transition μ_{ab} .

La puissance moyenne absorbée par les molécules par unité de volume s'écrit pour le faisceau sonde

$$\frac{\partial W^-}{\partial V} = 2\hbar\omega\Omega^- \operatorname{Im} \bar{\rho}_{01},$$

où

$$\bar{\rho}_{01} = \int_{-\infty}^{\infty} dv_x \rho_{01}(v_x).$$

Nous avons précédemment (2) démontré les équations de la matrice densité en tenant compte de l'effet de recul

$$i\hbar \left[\frac{\partial \rho}{\partial t} + \frac{1}{2M} (\mathbf{p} \cdot \mathbf{V} \rho + \mathbf{V} \rho \cdot \mathbf{p}) \right] = i\hbar R(\rho - \rho_0) + [H, \rho] - i\hbar \mathbf{V} \rho = [\mathbf{p}, \rho]$$

où $\mathbf{p}$ est l'opérateur impulsion, R un opérateur de relaxation et ρ_0 l'opérateur densité à l'équilibre.

Au premier ordre en Ω^- , il suffit de considérer les dix équations couplées pour les éléments de matrice densité entre les quatre états d'énergie-impulsion notés symboliquement

$$\begin{aligned} (-1) &\equiv (E_b, M v_z - \hbar k), & (0) &\equiv (E_a, M v_z), \\ (1) &\equiv (E_b, M v_z + \hbar k), & (2) &\equiv (E_a, M v_z + 2 \hbar k). \end{aligned}$$

avec $E_a > E_b$.

Dans un premier temps on résout les deux systèmes de trois équations décrivant l'interaction avec le seul champ de saturation ($\Omega^- = 0$) et les grandeurs correspondantes seront désignées par l'indice supérieur (0) :

$$\begin{aligned} \rho_{0-1}^{(0)} &= n_0 F(v_z) \Omega^+ (\omega_0 - \omega - \delta + k v_z + i \gamma_{ab}) [(\omega_0 - \omega - \delta + k v_z)^2 + \gamma_{ab}^2 (1+S)]^{-1}, \\ \rho_{21}^{(0)} &= n_0 F(v_z) \Omega^+ (\omega_0 - \omega + 3\delta + k v_z + i \gamma_{ab}) [(\omega_0 - \omega + 3\delta + k v_z)^2 + \gamma_{ab}^2 (1+S)]^{-1}, \\ \rho_{11}^{(0)} - \rho_{00}^{(0)} &= n_0 F(v_z) \{ 1 - 2(\Omega^+)^2 \gamma_{ab} [[(\omega_0 - \omega + 3\delta + k v_z)^2 + \gamma_{ab}^2 (1+S)]^{-1} \gamma_b^{-1} \\ &\quad + [(\omega_0 - \omega - \delta + k v_z)^2 + \gamma_{ab}^2 (1+S)]^{-1} \gamma_a^{-1}] \}, \end{aligned}$$

où

$$\omega_0 = (E_a - E_b)/\hbar \quad \text{et} \quad \omega_0^2 = \hbar \omega_0^2 / M c^2.$$

où γ_a , γ_b , γ_{ab} sont les constantes de relaxation des populations et du dipole optique; où S est le paramètre de saturation $S = 2/\gamma_{ab} ((1/\gamma_a) + (1/\gamma_b)) (\Omega^+)^2$ et où on a écrit la différence des populations à l'équilibre sous la forme $n_0 F(v_z)$ en explicitant la distribution normée de vitesses de Maxwell :

$$F(v_z) = \frac{1}{\sqrt{\pi} u} \exp - \left(\frac{v_z}{u} \right)^2.$$

On résout ensuite les quatre équations couplées par le champ sonde au premier ordre et on obtient :

$$\rho_{01}^{(1)}(v_z) = i [\gamma_{ab} + i(\omega_0 - \omega - \delta - k v_z)]^{-1} [\Omega^- (\rho_{11}^{(0)} - \rho_{00}^{(0)}) + \Omega^+ (\rho_{-11}^{(0)} - \rho_{02}^{(0)})],$$

où la différence entre les cohérences entre classes de vitesses est donnée par

$$\begin{aligned} \rho_{-11}^{(1)} - \rho_{02}^{(1)} &= -\Omega^- G(v_z) [\Omega^+ [\gamma_{ab} + i(\omega_0 - \omega - \delta - k v_z)]^{-1} \\ &\quad \times [(\gamma_b - 2 i k v_z)^{-1} + (\gamma_a - 4 i \delta - 2 i k v_z)^{-1}] (\rho_{11}^{(0)} - \rho_{00}^{(0)}) + i \rho_{0-1}^{(0)*} \\ &\quad \times (\gamma_b - 2 i k v_z)^{-1} + i \rho_{21}^{(0)*} (\gamma_a - 4 i \delta - 2 i k v_z)^{-1}] \end{aligned}$$

avec

$$\begin{aligned} G^{-1}(v_z) &= 1 + (\Omega^+)^2 [(\gamma_a - 4 i \delta - 2 i k v_z)^{-1} + (\gamma_b - 2 i k v_z)^{-1}] \\ &\quad \times [(\gamma_{ab} + i(\omega_0 - \omega - \delta - k v_z))^{-1} + (\gamma_{ab} - i(\omega_0 - \omega + 3\delta + k v_z))^{-1}]. \end{aligned}$$

L'expression précédente pour $\rho_{01}^{(1)}$ est en accord avec les formules obtenues par Stenholm ⁽⁷⁾ et se ramène au résultat donné par S. Haroche et F. Hartmann ⁽⁸⁾ lorsqu'on fait $\delta = 0$.

Elle peut être intégrée sur v_z par la méthode des résidus lorsque la largeur Doppler peut être considérée comme infinie par rapport à la largeur homogène. On peut alors montrer que $\rho_{01}^{(1)}$ est une somme de fractions rationnelles de $k v_z$ ayant au maximum un pôle dans le demi-plan complexe supérieur. En fermant le contour dans ce demi-plan et en ne retenant que les termes décrivant l'absorption saturée on obtient :

$$\begin{aligned} \bar{\rho}_{01}^{(1)} &= -2 i \sqrt{\pi} n_0 \Omega^- (\Omega^+)^2 (k u \sqrt{1+S})^{-1} [\gamma_{ab} + \Gamma - 2 i(\omega - \omega_0 + \delta)]^{-1} \\ &\quad \times \left[\gamma_a^{-1} - D_a^{-1} \left\{ (\gamma_{ab} + \Gamma - 2 i(\omega - \omega_0 + \delta))^{-1} \right. \right. \\ &\quad \times [(\gamma_b + 2 \Gamma - 2 i(\omega - \omega_0 + \delta))^{-1} \\ &\quad \left. \left. + (\gamma_a + 2 \Gamma - 2 i(\omega - \omega_0 + 3\delta))^{-1} \right] \right. \\ &\quad \left. \times (\Omega^+)^2 \gamma_a^{-1} + \frac{1}{2} (\sqrt{1+S} - i) [\gamma_b + 2 \Gamma - 2 i(\omega - \omega_0 + \delta)]^{-1} \right\} \Big], \end{aligned}$$

+ même expression obtenue en échangeant γ_a et γ_b et en changeant δ en $-\delta$ avec

$$\begin{aligned} D_a &= 1 + (\Omega^+)^2 [(\gamma_a + 2 \Gamma - 2 i(\omega - \omega_0 + 3\delta))^{-1} + (\gamma_a + 2 \Gamma - 2 i(\omega - \omega_0 + \delta))^{-1}] \\ &\quad \times [(\gamma_{ab} + \Gamma - 2 i(\omega - \omega_0 + \delta))^{-1} + (\gamma_{ab} + 3 \Gamma - 2 i(\omega - \omega_0 + 3\delta))^{-1}]. \end{aligned}$$

et

$$\Gamma = \gamma_{ab} \sqrt{1+S}.$$

A la limite où $\delta = 0$, on retrouve l'expression de E. Baklanov et V. Chebotaev ⁽⁹⁾. Lorsque δ est différent de zéro les deux termes de $\bar{\rho}_{01}^{(1)}$ correspondent à deux pics distincts dont les amplitudes relatives dépendent de γ_a et γ_b . Chaque pic n'est centré autour de $\omega - \omega_0 = \pm \delta$ que lorsque les termes comportant 3δ et correspondant à des transitions à trois quanta sont négligeables c'est-à-dire lorsque le doublet est complètement résolu. Autrement chaque composante est rendue asymétrique par ces termes et cette asymétrie va dans le sens d'un rapprochement apparent des maximums avec l'intensité du laser, que confirme l'expérience ⁽⁴⁾.

Si l'émission spontanée du niveau supérieur vers le niveau inférieur est importante, elle peut, par suite de son isotropie transférer des atomes d'un seul côté du trou creusé dans le niveau inférieur et causer, elle aussi, une distorsion du doublet qui tend à compenser l'effet précédent de rapprochement.

Notons enfin que la théorie que nous venons de présenter peut être étendue au cas de faisceaux gaussiens dans une approche généralisant la théorie déjà effectuée au troisième ordre de perturbation ⁽¹⁰⁾.

(*) Séance du 14 juin 1976.

(1) A. P. KOL'CHENKO, S. G. RAUTIAN et R. I. SOKOLOVSKII, *Sov. Phys. J.E.T.P.*, 28, 1969, p. 986.

(2) C. J. BORDÉ, *Thèse*, Université de Paris VI, 1972, Microfilm, n° AO-8849.

(3) C. J. BORDÉ et J. L. HALL dans *Laser Spectroscopy*, éd. par A. MOORADIAN et R. G. BREWER, Plenum Press, New York, 1974 et *Bull. Am. Phys. Soc.*, 19, 1974, p. 1196.

- (*) J. L. HALL, C. J. BORDÉ et K. UEHARA, *Proceedings of the second Symposium on Gas Laser Physics*, Novosibirsk, juin 1975 et *Phys. Rev. Lett.* (à paraître).
- (*) S. STENHOLM, *J. Phys.*, B : Atom. Molec. Phys., 7, 1974, p. 1235.
- (*) C. G. AMINOFF et S. STENHOLM, *Phys. Lett.*, 48 A, 1974, p. 483; *J. Phys.*, B : Atom. Molec. Phys., 1976.
- (*) E. V. BAKLANOV, *Opt. Comm.*, 13, 1975, p. 54.
- (*) S. HAROCH et F. HARTMANN, *Phys. Rev.*, A 6, 1972, p. 1280.
- (*) E. V. BAKLANOV et V. P. CHEROTAËV, *Sov. Phys. J.E.T.P.*, 33, 1971, p. 300.
- (*) C. J. BORDÉ, J. L. HALL, C. V. KUNASZ et D. G. HUMMER, *Phys. Rev.*, juillet 1976.

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

