Forme de raie pour la spectroscopie d'absorption saturée tenant compte des collisions élastiques faibles

Ch. J. Bordé, S. Avrillier, M. Gorlicki

▶ **To cite this version:**

Ch. J. Bordé, S. Avrillier, M. Gorlicki. Forme de raie pour la spectroscopie d'absorption saturée tenant compte des collisions élastiques faibles. Journal de Physique Lettres, 1977, 38 (13), pp.249-252. <10.1051/jphyslet:019770038013024900>. <jpa-00231370>

HAL Id: jpa-00231370

https://hal.archives-ouvertes.fr/jpa-00231370

Submitted on 1 Jan 1977

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Classification
Physics Abstracts
32.70Jz — 33.70Jg

FORME DE RAIE POUR LA SPECTROSCOPIE D'ABSORPTION SATURÉE TENANT COMPTE DES COLLISIONS ÉLASTIQUES FAIBLES

Ch. J. BORDÉ, S. AVRILLIER et M. GORLICKI

Laboratoire de Physique des Lasers, Avenue J.-B.-Clément,
93430 Villetaneuse, France

(*Reçu le 26 avril 1977, accepté le 31 mai 1977*)

Résumé. — En prenant la transformée de Fourier par rapport à la vitesse axiale des molécules, nous avons obtenu un profil de raie pour la spectroscopie de saturation à haute résolution qui tient compte des collisions élastiques et inélastiques, de la géométrie des faisceaux, de l'effet Doppler du 2e ordre, de l'effet de recul et de la modulation de fréquence du laser. L'inclusion des collisions élastiques d'angle faible permet d'expliquer la variation des taux d'élargissement par les collisions avec le diamètre des faisceaux. Le calcul s'applique aussi aux expériences à faisceaux séparés.

Abstract. — We use the Fourier transform with respect to axial velocity to derive a third-order line shape formula for high-resolution saturation spectroscopy that includes the effects of weak velocity-changing and quenching collisions, beam geometry, second-order Doppler shift, recoil splitting and laser frequency modulation. The inclusion of weak elastic collisions provides an explanation for the changes in the rates of pressure broadening with beam diameter. The derivation is easily applicable to experiments with spatially separated beams.

Une première théorie de la forme des raies d'absorption saturée [1] a déjà permis de rendre compte avec succès de l'influence spécifique de la géométrie des faisceaux lumineux sur la position et la largeur des résonances [2]. Cette formulation ne permet toutefois pas de décrire de façon satisfaisante la variation importante du coefficient d'élargissement avec la pression lorsqu'on change le diamètre du faisceau [3, 4]. Nous nous proposons dans cette lettre de montrer qu'on peut expliquer un tel comportement en incorporant l'influence des collisions élastiques d'angle faible dans la théorie. De plus, ce progrès est obtenu sans complication importante de l'expression mathématique de la forme de raie. Nous conserverons les notations de la référence [1] avec toutefois la convention opposée $E_a < E_b$ pour les énergies du système à deux niveaux.

L'influence de l'émission spontanée et des collisions déphasantes et inélastiques est regroupée dans le jeu des constantes de relaxation $\gamma_{\alpha\beta}$ et, en ce qui concerne les déplacements, dans ω_0.

L'influence des collisions élastiques se traduit dans l'équation que doit satisfaire chaque élément $\rho_{\alpha\beta}(\mathbf{v})$ de la matrice densité par l'introduction d'un terme supplémentaire (dit de restitution) de la forme [5, 6] :

$$\int \mathrm{d}^3 v' \; W_{\alpha\beta}(\mathbf{v}' \to \mathbf{v}) \; \rho_{\alpha\beta}(\mathbf{v}') \tag{1}$$

(le terme de départ correspondant peut être incorporé dans $\gamma_{\alpha\beta} \; \rho_{\alpha\beta}(\mathbf{v})$).

Dans le cas de la spectroscopie d'absorption saturée à haute résolution on peut considérer que seules les collisions d'angle de diffusion très faible et que seules les valeurs de la vitesse axiale v_z très proches de zéro jouent un rôle dans la forme de raie. Nous ferons donc les approximations suivantes :

— les composantes transverses de la vitesse sont inchangées dans les collisions élastiques faibles,

— le noyau $W_{\alpha\beta}(v'_z \to v_z)$ ne dépend que de la différence $v_z - v'_z$ et éventuellement de $v_r = |\mathbf{v}_\perp|$.

Dans ces conditions l'intégrale (1) précédente prend la forme d'un produit de convolution et les équations de la matrice densité se réduisent à un système d'équations différentielles couplées en prenant les transformées de Fourier suivantes par rapport à v_z [6] :

Article published online by EDP Sciences and available at http://dx.doi.org/10.1051/jphyslet:019770038013024900

$$\tilde{\rho}_{\alpha\beta}(\theta) = \int_{-\infty}^{+\infty} \rho_{\alpha\beta}(v_z)\, e^{ikv_z\theta}\, dv_z\,, \qquad \tilde{W}_{\alpha\beta}(\theta) = \int_{-\infty}^{+\infty} W_{\alpha\beta}(v_z)\, e^{ikv_z\theta}\, dv_z\,. \tag{2}$$

Avec l'approximation des ondes tournantes et en négligeant les pulsations rapides des populations, on peut écrire les éléments non diagonaux de la matrice densité dans le référentiel ($\mathbf{r}'$, t') des molécules de vitesse $\mathbf{v}$ sous la forme :

$$\rho'_{\mathrm{ba}} = (\rho'^{+}_{\mathrm{ba}}\, e^{ikz'} + \rho'^{-}_{\mathrm{ba}}\, e^{-ikz'})\, e^{-i\omega t'}\,. \tag{3}$$

Dans ce référentiel les équations pour les cohérences optiques et pour les populations s'écrivent respectivement :

$$\left[\frac{\partial}{\partial t'} + i(\omega_0 - \omega) + \gamma_{\mathrm{ba}} - \tilde{W}_{\mathrm{ba}}(\theta \pm t')\right] \tilde{\rho}'^{\pm}_{\mathrm{ba}}(\mathbf{r}', t', \mathbf{v}_\perp, \theta) = \\ = -\, i \sum_j \Omega_j^{\pm}\, e^{-i\varphi_j^{\pm}}\, U_j^{\pm *}(\mathbf{r}'_\perp + \mathbf{v}_\perp t', z) \sum_{\alpha = \mathrm{a},\mathrm{b}} \varepsilon_\alpha\, \tilde{n}'_\alpha(\mathbf{r}', t', \mathbf{v}_\perp, \theta \pm t') \tag{4}$$

$$\left[\frac{\partial}{\partial t'} + \gamma_\alpha - \tilde{W}_\alpha(\theta)\right] \tilde{n}'_\alpha(\mathbf{r}', t', \mathbf{v}_\perp, \theta) = [\gamma_\alpha - \tilde{W}_\alpha(\theta)]\, \tilde{n}'^{(0)}_\alpha(\mathbf{v}_\perp, \theta) + \\ + 2\, \varepsilon_\alpha\, \mathrm{Im} \left\{ \sum_{j,\pm} \Omega_j^{\pm}\, e^{i\varphi_j^{\pm}}\, U_j^{\pm}(\mathbf{r}'_\perp + \mathbf{v}_\perp t', z)\, \tilde{\rho}'^{\pm}_{\mathrm{ba}}(\mathbf{r}', t', \mathbf{v}_\perp, \theta \mp t') \right\} \tag{5}$$

avec $\varepsilon_{\mathrm{a}} = -1$, $\varepsilon_{\mathrm{b}} = +1$ et où le champ électrique a été écrit comme une somme (sur j) de contributions provenant de faisceaux pouvant être spatialement distincts [7, 8]. On a de plus supposé que la géométrie des faisceaux varie très lentement avec z. Ramenées dans le référentiel du laboratoire, les relations entre les composantes de Fourier des cohérences optiques [1] et les populations s'écrivent :

$$\tilde{\rho}_{\mathrm{ba},\pm 1}(\mathbf{r}, t, \mathbf{v}_\perp, \theta) = -\, i \sum_{j,\alpha} \varepsilon_\alpha\, \Omega_j^{\pm}\, e^{-i\varphi_j^{\pm}} \int_0^{+\infty} d\tau\, \tilde{G}^{\pm}_{\mathrm{ba}}(\theta, \tau)\, U_j^{\pm *}(\mathbf{r} - \mathbf{v}_\perp \tau).\tilde{n}_\alpha(\mathbf{r} - \mathbf{v}_\perp \tau, t - \tau, \mathbf{v}_\perp, \theta \mp \tau) \tag{6}$$

$$\tilde{n}_\alpha(\mathbf{r}, t, \mathbf{v}_\perp, \theta) - \tilde{n}^{(0)}_\alpha(\mathbf{v}_\perp, \theta) = 2\, \varepsilon_\alpha\, \mathrm{Im} \left\{ \sum_{j,\pm} \Omega_j^{\pm}\, e^{i\varphi_j^{\pm}} \int_0^{+\infty} d\tau\, \tilde{G}_\alpha(\theta, \tau)\, U_j^{\pm}(\mathbf{r} - \mathbf{v}_\perp \tau)\, \tilde{\rho}_{\mathrm{ba},\pm 1}(\mathbf{r} - \mathbf{v}_\perp \tau, t - \tau, \mathbf{v}_\perp, \theta) \right\} \tag{7}$$

où les propagateurs ($\tilde{G}_{\alpha\beta}$) sont donnés par :

$$\tilde{G}^{\pm}_{\mathrm{ba}}(\theta, \tau) = \exp \left\{ -\, [i(\omega_0 - \omega) + \gamma_{\mathrm{ba}}]\, \tau + \int_0^{\tau} \tilde{W}_{\mathrm{ba}}(\theta \mp t')\, dt' \right\} \tag{8}$$

$$\tilde{G}_\alpha(\theta, \tau) = \exp[\tilde{W}_\alpha(\theta) - \gamma_\alpha]\, \tau\,. \tag{9}$$

La variable θ a la signification du temps indiqué par une horloge comptant positivement pour les cohérences se propageant dans un sens, négativement pour celles se propageant dans l'autre sens et restant arrêtée pour les populations. Cette remarque et les formules précédentes permettent une construction diagrammatique des termes aux différents ordres de perturbation. Au troisième ordre, la modification de puissance lumineuse absorbée par unité de longueur correspondant au signal d'absorption saturée dû à des interactions successives avec les faisceaux notés 1, 2, 3, 4 s'écrit :

$$\frac{\partial \overline{W}^{\pm}_{\mathrm{abs}}}{\partial z} = -\, 4 \sqrt{\pi} n_0 \frac{\hbar\omega}{ku}\, \Omega_4^{\pm}\, \Omega_3^{\pm}\, \Omega_2^{\mp}\, \Omega_1^{\mp}\, \mathrm{Re} \left\{ \exp[i(\varphi_4^{\pm} - \varphi_3^{\pm} + \varphi_2^{\mp} - \varphi_1^{\mp})] \times \right. \\ \left. \times \int d^2 v_\perp\, F_\perp(\mathbf{v}_\perp) \int_0^{+\infty} d\tau \int_0^{+\infty} d\tau'\, \tilde{G}^{+}_{\mathrm{ba}}(0, \tau)\, \tilde{G}_\alpha(\mp \tau, \tau')\, \tilde{G}^{-}_{\mathrm{ba}}(0, \tau)\, \mathrm{S}^{\pm}_{1234}(\mathbf{v}_\perp \tau, \mathbf{v}_\perp \tau') \right\} \tag{10}$$

où la fonction de *corrélation*

$$\mathrm{S}^{\pm}_{1234}(\mathbf{v}_\perp \tau, \mathbf{v}_\perp \tau') = \iint_{-\infty}^{+\infty} dx\, dy\, U_4^{\pm}(\mathbf{r})\, U_3^{\pm *}(\mathbf{r} - \mathbf{v}_\perp \tau)\, U_2^{\mp}(\mathbf{r} - \mathbf{v}_\perp(\tau + \tau'))\, U_1^{\mp *}(\mathbf{r} - \mathbf{v}_\perp(2\,\tau + \tau')) \tag{11}$$

comporte toute l'information sur la géométrie des faisceaux.

L'intégration sur v_z a été effectuée dans l'approximation de la largeur Doppler infinie :

$$\tilde{n}_{\mathrm{a}}^{(0)}(\mathbf{v}_\perp, \theta) - \tilde{n}_{\mathrm{b}}^{(0)}(\mathbf{v}_\perp, \theta) = \frac{2\sqrt{\pi} n_0}{ku} \delta(\theta) F_\perp(\mathbf{v}_\perp) . \tag{12}$$

En tenant compte de la parité des fonctions $W_{\alpha\beta}$ nous voyons que la modification apportée par les collisions élastiques au profil de raie revient à retrancher de γ_α la fonction $\tilde{W}_\alpha(\tau)$ et de γ_{ba} la fonction

$$\Phi(\tau) = \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}v_z \, W_{\mathrm{ba}}(v_z) \sin c(kv_z \tau) . \tag{13}$$

Le même résultat a été obtenu par un traitement purement diagrammatique des collisions élastiques [10] sans utiliser la transformée de Fourier par rapport à v_z.

Dans le cas de faisceaux gaussiens le calcul de $\mathcal{S}^\pm$ et l'intégration de (10) sur τ' se font encore sans difficulté et les formules obtenues dans la référence [1] sont simplement modifiées selon la règle précédente. A titre d'exemple, à condition que les noyaux de collision $W_{\alpha\beta}$, ω_0 et les constantes $\gamma_{\alpha\beta}$ dépendent peu de la vitesse transverse $\mathbf{v}_\perp$, on obtient pour chaque composante d'effet de recul la forme de raie :

$$J_\alpha^\pm = \frac{D}{A} \operatorname{Im} \int_0^{+\infty} [\gamma_\alpha - \tilde{W}_\alpha(\tau)] \frac{\mathrm{e}^{X - iY} E_1(X - iY) - \mathrm{e}^{X + iY} E_1(X + iY)}{Y} \times$$
$$\times \exp \left\{ -2[i(\omega_\alpha - \omega) + \gamma_{\mathrm{ba}} - \Phi(\tau)] \tau \right\} \varepsilon_n i^n J_n(2 \beta \omega_m \tau) \, \mathrm{d}\tau \tag{14}$$

avec

$$X = [\gamma_\alpha - \tilde{W}_\alpha(\tau)] (B_\pm / A) \tau$$
$$Y = \left[\frac{\gamma_\alpha - \tilde{W}_\alpha(\tau)}{u\sqrt{A}} \right] \left(1 + Du^2 \tau^2 - i\omega_0 \frac{u^2}{c^2} \tau \right)^{1/2}$$
$$\omega_\alpha = \omega_0 (1 - \varepsilon_\alpha \hbar\omega / 2 Mc^2)$$
$$\varepsilon_0 = 1 , \quad \varepsilon_{n \neq 0} = 2 .$$

E_1 et J_n sont respectivement la fonction exponentielle intégrale d'argument complexe et la fonction de Bessel d'ordre correspondant à l'harmonique détectée. Les paramètres A, $B_\pm$, D ne dépendent que de la géométrie des deux faisceaux et sont explicités dans la référence [1] et β est l'amplitude de l'excursion de phase à la fréquence ω_m.

Lorsque les ondes sont planes, en l'absence de modulation et en négligeant effet de recul et effet Doppler transverse, on retrouve l'expression donnée par V. A. Alekseev *et al.* [6]. Celle-ci a déjà permis à ces auteurs d'expliquer comment les collisions élastiques faibles peuvent introduire une courbure dans les variations de la largeur et du déplacement des résonances avec la pression. Les noyaux de collision ont une largeur fixe et ne vont contribuer à la forme des résonances que si cette largeur (traduite en unités de fréquence) est comparable à la largeur des raies. A basse pression cette dernière étant déterminée par la géométrie des faisceaux on comprend que suivant le diamètre de ceux-ci les collisions élastiques puissent contribuer ou non à l'élargissement des raies. Pour les diamètres très faibles les noyaux de collision se comportent comme des pics de Dirac et les termes de départ et de restitution se compensent dans la forme de raie. Pour les grands diamètres (très haute résolution) les collisions de restitution donnent un fond très large et très aplati. Ce n'est qu'entre ces deux extrêmes que les noyaux de collisions jouent un rôle important dans l'élargissement et le déplacement des résonances. (On peut parvenir facilement à ces conclusions qualitatives en développant $\exp[\tilde{W}_\alpha(\tau)\, \tau']$ ou $\exp[\Phi(\tau)\, \tau]$ au premier ordre et en raisonnant sur la forme des fonctions ajoutées à la forme de raie sans collisions élastiques grâce au théorème de convolution.) On s'attend donc à ce que le taux d'élargissement avec la pression passe par un maximum lorsqu'on augmente le diamètre du faisceau comme le montre l'expérience (3). Une autre situation expérimentale que permet de décrire la théorie précédente est celle où plusieurs faisceaux sont séparés dans l'espace, comme dans la technique des franges de Ramsey [7] ou simplement lors des expériences d'absorption saturée avec un faisceau de saturation et un faisceau sonde séparés par une distance réglable d [8, 9].

Dans ce dernier cas on vérifie facilement que les valeurs de τ' démarrant à partir d'un seuil d/v_x, un poids supplémentaire sera donné à $\tilde{W}_\alpha(\tau)$ dans $\exp[\tilde{W}_\alpha(\tau)\, \tau']$, ce qui se traduit par un élargissement correspondant simplement à la diffusion des populations dans l'espace des vitesses au cours du temps de vol entre les deux faisceaux.

Bibliographie

[1] BORDÉ, C. J., HALL, J. L., KUNASZ, C. V. et HUMMER, D. G., *Phys. Rev.* **14** (1976) 236.

[2] HALL, J. L. et BORDÉ, C. J., *Appl. Phys. Lett.* **29** (1976) 788.

[3] HALL, J. L., dans *Fundamental and Applied Laser Physics* (Esfahan Laser Symposium) édité par M. S. Feld, A. Javan et N. Kurnit (Wiley, New York) 1973.

[4] HALL, J. L., BORDÉ, C. J. and UEHARA, K., *Phys. Rev. Lett.* **37** (1976) 1339.

[5] BERMAN, P. R., *Appl. Phys.* **6** (1975) 283.

[6] ALEKSEEV, V. A., ANDREEVA, T. L. et SOBEL'MAN, I. I., *Sov. Phys. JETP* **37** (1973) 413.

[7] BORDÉ, C. J., *C.R. Hebd. Séan. Acad. Sci.* **284B** (1977) 101.

[8] KOMPANETS, O. N. et LETOKHOV, V. S., *Sov. Phys. JETP* **35** (1972) 687.

[9] WU, C. Y. R. et DOWS, D. A., à paraître.

[10] BORDÉ, C. J. et AVRILLIER, S., à paraître.

ERRATUM

Forme de raie pour la spectroscopie d'absorption saturée tenant compte des collisions élastiques faibles

Ch. J. Bordé, S. Avrillier et M. Gorlicki

Laboratoire de Physique des Lasers, avenue J.-B.-Clément, 93430 Villetaneuse, France.

(*J. Physique Lett.* 38 (1977) L-249)

Les équations (5) et (7) doivent être remplacées par les suivantes :

$$\left[\frac{\partial}{\partial t'} + \gamma_\alpha - \tilde{W}_\alpha(\theta)\right] \tilde{n}'_\alpha(\mathbf{r}', t', \mathbf{v}_\perp, \theta) = [\gamma_\alpha - \tilde{W}_\alpha(\theta)]\, \tilde{n}'^{(0)}_\alpha(\mathbf{v}_\perp, \theta) + \\ + i\varepsilon_\alpha \left\{ \sum_{j,\pm} \Omega_j^\pm \, \mathrm{e}^{-i\varphi_j^\pm} \, U_j^{\pm *}(\mathbf{r}'_\perp + \mathbf{v}_\perp t', z) \, (\tilde{\rho}'^{\pm}_{\mathrm{ba}}(\mathbf{r}', t', \mathbf{v}_\perp, -\theta \mp t'))^* - \right. \\ \left. - \sum_{j,\pm} \Omega_j^\pm \, \mathrm{e}^{i\varphi_j^\pm} \, U_j^\pm(\mathbf{r}'_\perp + \mathbf{v}_\perp t', z) \, \tilde{\rho}'^{\pm}_{\mathrm{ba}}(\mathbf{r}', t', \mathbf{v}_\perp, \theta \mp t') \right\} \tag{5}$$

$$\tilde{n}_\alpha(\mathbf{r}, t, \mathbf{v}_\perp, \theta) - \tilde{n}^{(0)}_\alpha(\mathbf{v}_\perp, \theta) = i\varepsilon_\alpha \left\{ \sum_{j,\pm} \Omega_j^\pm \, \mathrm{e}^{-i\varphi_j^\pm} \int_0^{+\infty} \mathrm{d}\tau \, \tilde{G}_\alpha(\theta, \tau) \, U_j^{\pm *}(\mathbf{r} - \mathbf{v}_\perp \tau) \, (\tilde{\rho}_{\mathrm{ba},\pm 1}(\mathbf{r} - \mathbf{v}_\perp \tau, t - \tau, \mathbf{v}_\perp, -\theta))^* - \right. \\ \left. - \sum_{j,\pm} \Omega_j^\pm \, \mathrm{e}^{i\varphi_j^\pm} \int_0^{+\infty} \mathrm{d}\tau \, \tilde{G}_\alpha(\theta, \tau) \, U_j^\pm(\mathbf{r} - \mathbf{v}_\perp \tau) \, \tilde{\rho}_{\mathrm{ba},\pm 1}(\mathbf{r} - \mathbf{v}_\perp \tau, t - \tau, \mathbf{v}_\perp, \theta) \right\}. \tag{7}$$

Ces formules conduisent pour $\theta = 0$ au même résultat final qui est donc inchangé. Nous signalons également une erreur typographique dans la formule (13) :

sinc $(kv_z \tau)$ est la fonction sinus cardinal de l'argument $kv_z \tau$.