

Aperçu sur l'effet des collisions
en présence d'irradiation laser résonnante intense

But de ce §

- Etude de l'équation pilote décrivant l'effet des collisions sur la matrice densité de l'atome habillé.
- Etude du contenu physique de cette équation (limites d'impact et statistique).
- Effet des collisions sur le spectre fluorescence (description de quelques expériences récentes).

A. Effet des collisions en l'absence d'irradiation laser

On suppose qu'on sait décrire l'évolution correspondante de la matrice densité atomique au moyen d'un certain nombre de paramètres phénoménologiques dont nous discutons ci-dessous la signification physique.

① Equations d'évolution. 3 niveaux a, b, c non dégénérés. Transitions pompe: a b - éventuellement transition soude: bc

- Population d'un niveau atomique α - Classe de vitesses v

$$\dot{\sigma}_{\alpha\alpha}(v) = \Lambda_{\alpha}(v) - \gamma_{\alpha}(v) \sigma_{\alpha\alpha}(v) + \int dv' \sum_{\beta} W_{\alpha\beta}(v' \rightarrow v) \sigma_{\beta\beta}(v') \quad (XI-1)$$

- Cohérence entre α et β $\beta, \alpha = a, b, c.$

$$\dot{\sigma}_{\beta\alpha}(v) = -\gamma_{\beta\alpha}(v) \sigma_{\beta\alpha}(v) \quad (XI-2)$$

$$\gamma_{\beta\alpha}(v) = \frac{1}{2} [\gamma_{\alpha}(v) + \gamma_{\beta}(v)] + \gamma'_{\beta\alpha}(v) \quad (XI-3)$$

② Signification physique des différents termes.

$\Lambda_{\alpha}(v)$: Terme source valable si α est un niveau excité faiblement peuplé, le reste des niveaux (fondamental ou métastables) constituant un "réservoir" à partir duquel les collisions transfèrent des atomes dans α avec un taux $\Lambda_{\alpha}(v)$.

Il se peut que le système a, b, c contienne le fondamental a et puisse être considéré comme un système "fermé". A ce moment, $\Lambda_{\alpha} = 0$, le peuplement des états excités b, c se faisant optiquement à partir de a.

$W(v' \rightarrow v)$: Noyau de changement de vitesse par collision : taux de transfert de la classe de vitesse v' à la classe v .

$W_{\alpha\alpha}(v' \rightarrow v)$: changement de vitesse sans changement d'état interne (collisions élastiques).

$W_{\alpha\beta}(v' \rightarrow v)$: collisions inélastiques changeant l'état interne et la vitesse.

Notons que nous n'avons pas fait figurer de termes de changement de vitesse dans l'équation d'évolution de la cohérence optique $\sigma_{\beta\alpha}(v)$. En effet une collision changeant la vitesse détruit en général la dipôle optique : les potentiels d'interaction avec le perturbateur sont en général suffisamment différents pour les états α et β pour qu'un paquet d'ondes incident (très localisé) correspondant à un atome dans une superposition de α et β se sépare en 2 paquets d'ondes l'un pour α , l'autre pour β (Références ; voir articles Berman cités à la fin de ce chapitre).

$\gamma_\alpha(v)$: départ de α , v vers d'autres états ^(que a, b, c) ou d'autres classes de vitesse.

$\gamma_{\beta\alpha}(v)$: Temps d'amortissement du dipôle. En plus de la demi-somme de $\gamma_\alpha(v)$ et $\gamma_\beta(v)$, $\gamma_{\beta\alpha}(v)$ contient un terme $\gamma'_{\beta\alpha}(v)$ représentant le déphasage du dipôle au cours d'une collision ne changeant pas la vitesse (variations différentes des énergies de α et β au cours de la collision)

③ Remarques

(i) Le modèle le plus simple et très couramment utilisé consiste à négliger les termes de changement de vitesse dans XI-1 (moyen v difficile à calculer). On néglige aussi la dépendance en v des temps $\gamma(v)$. On obtient ainsi des équations indépendantes pour chaque classe de vitesses.

Négliger le dernier terme de (XI-1) en gardant le second reviendrait à supposer que les collisions où l'atome change de vitesse en restant dans α sont négligeables devant celles qui le font partir de α vers un état autre que a, b, c. Si α est à des distances optiques des autres états, une telle hypothèse n'est pas réaliste et, si l'on néglige le dernier terme de XI-1, il faut aussi négliger le second. Le départ de l'état α est alors essentiellement due à des processus radiatifs d'émission spontanée, que nous avons déjà étudiés précédemment.

Notons cependant que le fait de négliger $\gamma_\alpha(v)$ et $\gamma_\beta(v)$ n'entraîne pas que l'on puisse aussi négliger $\gamma'_{\beta\alpha}(v)$. L'atome passant en ligne droite près du perturbateur (pas de changement de vitesse) peut avoir ses états α et β déplacés de manière différente de sorte que le dipôle entre α et β subisse un déphasage appréciable au cours de la collision.

Dans le § C, nous considérerons un exemple simple où l'on considère uniquement des collisions déphasantes [seul $\gamma'_{\beta\alpha} \neq 0$]

(ii) Si les niveaux a, b, c n'étaient pas dégénérés, on pourrait considérer des collisions ne changeant pas la vitesse mais induisant des transitions entre les sous-niveaux de a, b, c. Si ces collisions sont plus importantes que les collisions changeant la vitesse, on peut être amené à négliger le dernier terme de XI-1 tout en gardant le second (modifié mais sur pour tenir compte de la dégénérescence)

B - Comment décrire l'effet des collisions en présence d'irradiation laser à la limite des temps de collision très courts.

① Idee physique

C'est la même que celle développée à propos de l'émission spontanée (cf page VIII-7)

Si le temps de collision est extrêmement court, on peut, pendant la collision, négliger le couplage entre l'atome et les photons laser. L'effet d'une collision peut donc être décrit en utilisant les équations XI-1 & XI-2 relatives à l'atome nu, et en rajoutant simplement les nombres quantiques du rayonnement laser qui restent spectateurs.

Bien sûr, entre 2 collisions, l'atome et les photons laser ont le temps de se recoupler, ce qui impose de passer de la base découplée à la base couplée.

② Principe du calcul

- Il est schématisé sur la figure 1

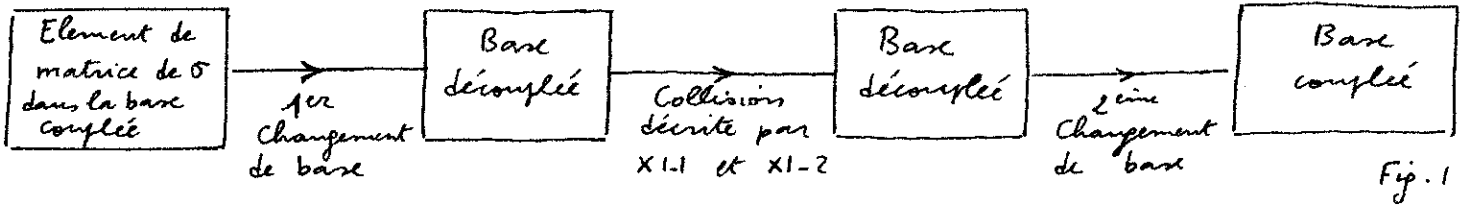


Fig. 1

Nous donnerons dans les §§ suivants des exemples de tels calculs.

- Le cas des collisions de changement de vitesse s'insère très bien dans le schéma de la figure 1. Il faut cependant noter le point important suivant : par suite du déplacement Doppler, le désaccord entre la fréquence atomique ω_0 et la fréquence apparente du laser

$\omega_L(v) = \omega_L - kv$ dépend de v et les formules de changement de base dépendent de v par l'intermédiaire de $\varphi(v)$ défini par $\tan 2\varphi(v) = \omega_1 / [\omega_0 - \omega_L(v)]$.

Si la vitesse change au cours de la collision et passe de v à v' les 2 changements de base de la figure 1 ne sont pas inverses, d'un de l'autre car ils correspondent à des angles $\varphi(v)$ et $\varphi(v')$ différents.

③ Conditions de validité.

- En l'absence de rayonnement laser, les fréquences d'évolution des grandeurs atomiques (sur la transition pompe) sont 0 (populations) et ω_0 (dipôle atomique).



Fig. 2

- Ces fréquences sont modifiées par le couplage atome-laser et deviennent $0, \pm \bar{\omega}$; $\omega_L, \omega_L \pm \bar{\omega}$



Fig. 3

- La collision durant un temps τ_c , le spectre de fréquences de la perturbation correspondante a une largeur de l'ordre de $1/\tau_c$.

On pourra considérer la collision comme durant un temps suffisamment court, c-à-d la perturbation correspondante comme ayant un spectre suffisamment blanc, si $1/\tau_c$ est suffisamment grand devant les modifications de fréquence induites par le couplage atome-laser et qui sont de l'ordre de $\bar{\omega}$ (différences entre les figures 2 et 3)

le schéma de calcul de la figure 1 sera donc valable si $\bar{\omega} = \sqrt{\omega_1^2 + (\omega_0 - \omega_L)^2} \ll 1/\tau_c$, c-à-d si

$\omega_1, |\omega_0 - \omega_L| \ll 1/\tau_c$ (XI-4)

La condition $\omega_1 \ll 1/\tau_c$ est en général toujours bien réalisée (les rayonnements laser ne sont pas encore suffisamment intenses pour réaliser

des fréquences de Rabi de l'ordre de $1/\tau_c \approx 10^{12}$ Hz. Par contre, en variant le désaccord $|\omega_0 - \omega_L|$, on peut aisément réaliser $|\omega_0 - \omega_L| \gg 1/\tau_c$ ce qui interdit alors d'utiliser le schéma de la figure 1. Nous donnerons plus loin un aperçu de ce qui se passe dans ce cas.

Le régime correspondant aux conditions (XI-4) est souvent appelé dans la littérature "régime d'impact".

④ Approximation séculaire.

Soit γ l'ordre des temps de relaxation associés aux collisions. Si $\gamma \ll \omega$, on peut, comme pour l'émission spontanée, faire l'approximation séculaire qui consiste à négliger le couplage par collisions entre éléments de matrice de même de l'atome habillé évoluant à des fréquences différentes.

C- Etude d'un exemple simple où l'on considère uniquement des collisions déphasantes.

① Hypothèses simplificatrices.

- a est l'état fondamental, b le 1^{er} état excité (on ne considère pas de transition soude bc).
- a b est un système fermé. Il n'y a pas besoin de termes sources Λ_a et Λ_b .
- a et b sont non dégénérés.
- Les collisions de transfert de b à a ("quenching") sont négligeables étant donnée la grande distance (optique) entre a et b. Pour simplifier les calculs, on néglige aussi les collisions où l'atome change de vitesse en restant dans le même état atomique (l'expérience décrite plus loin est très peu sensible à de telles collisions).

Donc le seul transfert entre b et a est dû à l'émission spontanée et décrit par les équations VIII-11

$$\dot{\sigma}_{bb} = -\Gamma \sigma_{bb} \quad \dot{\sigma}_{aa} = \Gamma \sigma_{bb} \quad (XI-5)$$

- Par contre, on suppose que les collisions déphasantes sont importantes. Elles sont décrites par :

$$\dot{\sigma}_{ba} = -\gamma' \sigma_{ba} \quad (XI-6)$$

Il faut ajouter à (XI-6) l'amortissement par émission spontanée et l'évolution propre de sorte que finalement :

$$\dot{\sigma}_{ba} = -\left[\gamma' + \frac{\Gamma}{2} + i\omega_0\right] \sigma_{ba} \quad (XI-7)$$

② Liens entre γ' et les paramètres de collision

- Approchons le perturbateur P à une distance r fixe de l'atome A. Les énergies des états b et a, séparées par une distance ω_0 pour r grand, subissent en général des déplacements différents (fig. 5)

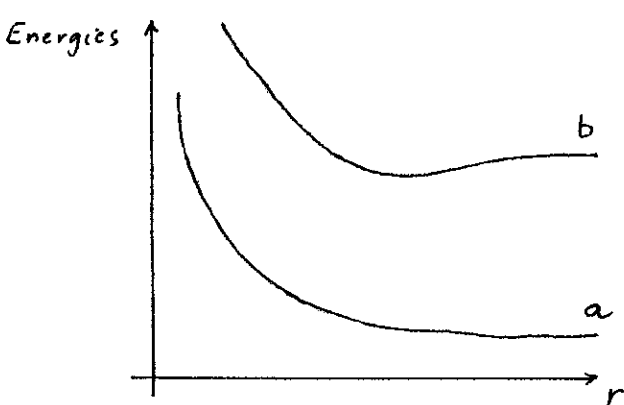


Fig. 5

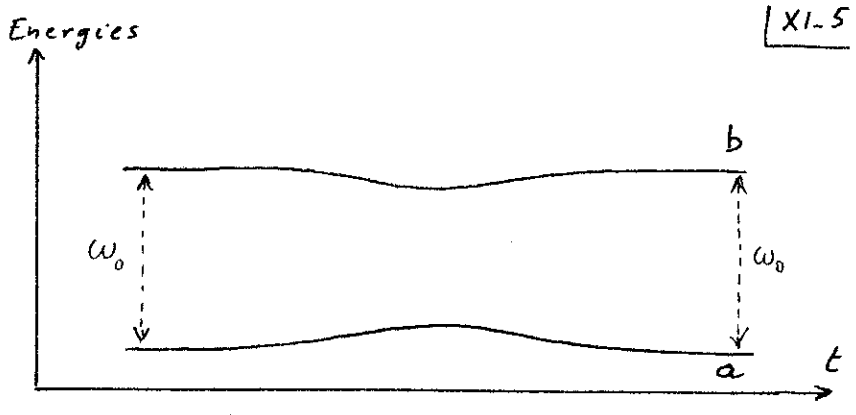


Fig. 6

Considérons maintenant une collision décrite par une trajectoire classique rectiligne (paramètre d'impact pas trop petit). Les énergies des états a et b sont alors des fonctions du temps représentées sur la figure 6.

Le déphasage accumulé par le dipôle optique est donc :

$$\phi = \int_{-\infty}^{+\infty} [E_b(t) - E_a(t) - \omega_0] dt \quad (X1-8)$$

et la variation du dipôle (en représentation d'interaction) associé à une collision sera donnée par

$$d \langle D^- \rangle = - (1 - e^{-i\phi}) \langle D^- \rangle \quad (X1-9)$$

L'équation (X1-9) décrit l'effet d'une collision de paramètre d'impact b et de vitesse \vec{v}

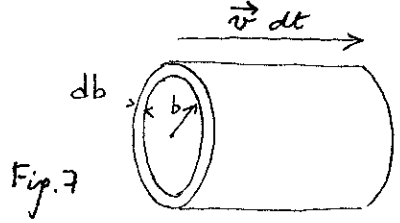


Fig. 7

Si N est le nombre de perturbateurs par unité de volume, au cours du temps dt, $2\pi b db \vec{v} f(\vec{v}) d^3v dt$ collisions analogues se produisent (où $f(\vec{v})$ est la distribution des vitesses). Fig. 7

En intégrant sur b et \vec{v} , on obtient finalement :

$$\frac{d}{dt} \langle D^- \rangle = - \langle 1 - e^{-i\phi} \rangle \langle D^- \rangle \quad (X1-10)$$

où $\langle 1 - e^{-i\phi} \rangle = 2\pi N \int_0^\infty b db \int d^3v \vec{v} f(\vec{v}) (1 - e^{-i\phi(b, \vec{v})}) \quad (X1-11)$

On a donc finalement :

$$\frac{d}{dt} \sigma_{ba} = - \gamma' \sigma_{ba} \quad (X1-12)$$

avec $\gamma' = \langle 1 - e^{-i\phi} \rangle = \text{Re } \gamma' + i \text{Im } \gamma' = r + i s \quad (X1-13)$

$$r = \langle 1 - \cos \phi \rangle \quad s = \langle \sin \phi \rangle \quad (X1-14)$$

Insistons bien sur le fait que de telles collisions n'induisent aucune transition atomique. Elles déphasent simplement le dipôle atomique.

On peut les qualifier de collisions "élastiques" ou "adiabatiques".

③ Effet des collisions déphasantes en présence d'irradiations lasers à la limite des temps de collision très courts ($\omega, \tau_c, |\omega_0 - \omega_L| \tau_c \ll 1$)

- Appliquons le schéma de la figure 1 au calcul de $\frac{d}{dt} \langle 1, n | \sigma | 1, n \rangle$

(i) 1^{er} Changement de base (voir figure 4 page VIII-3)

$$\frac{d}{dt} \langle 1, n | \sigma | 1, n \rangle = \cos^2 \varphi \frac{d}{dt} \langle b, n | \sigma | b, n \rangle + \sin^2 \varphi \frac{d}{dt} \langle a, n+1 | \sigma | a, n+1 \rangle + \sin \varphi \cos \varphi \left[\frac{d}{dt} \langle a, n+1 | \sigma | b, n \rangle + \frac{d}{dt} \langle b, n | \sigma | a, n+1 \rangle \right] \quad (XI-15)$$

(ii) Effet des collisions (dans la base découplée)

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \langle b, n | \sigma | b, n \rangle &= \frac{d}{dt} \langle a, n+1 | \sigma | a, n+1 \rangle = 0 \\ \frac{d}{dt} \langle b, n | \sigma | a, n+1 \rangle &= -\gamma' \langle b, n | \sigma | a, n+1 \rangle \\ \frac{d}{dt} \langle a, n+1 | \sigma | b, n \rangle &= -\gamma'^* \langle a, n+1 | \sigma | b, n \rangle \end{aligned} \quad (XI-16)$$

(iii) 2^{em} changement de base (et approximation séculaire permettant de ne garder que les populations)

On reporte (XI-16) dans (XI-15) et on repasse dans la base couplée. On obtient ainsi

$$\frac{d}{dt} \langle 1, n | \sigma | 1, n \rangle = - \underbrace{(\gamma' + \gamma'^*)}_{2r} \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi (\langle 1, n | \sigma | 1, n \rangle - \langle 2, n | \sigma | 1, n \rangle) \quad (XI-17)$$

- Des calculs analogues permettent d'obtenir la vitesse de variations des autres éléments de matrice de σ . On obtient ainsi finalement

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \langle 1, n | \sigma | 1, n' \rangle &= -2r \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi (\langle 1, n | \sigma | 1, n' \rangle - \langle 2, n | \sigma | 2, n' \rangle) \\ \frac{d}{dt} \langle 2, n | \sigma | 2, n' \rangle &= -2r \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi (\langle 2, n | \sigma | 2, n' \rangle - \langle 1, n | \sigma | 1, n' \rangle) \\ \frac{d}{dt} \langle 1, n | \sigma | 2, n' \rangle &= - [r (\cos^2 \varphi + \sin^2 \varphi) + i s (\cos^2 \varphi - \sin^2 \varphi)] \langle 1, n | \sigma | 2, n' \rangle \end{aligned} \quad (XI-18)$$

④ Discussion physique

- Faisons $n' = n$ dans les 2 premières équations.

- On voit que dans la base de l'atome habillé les collisions déphasantes produisent des transferts entre les 2 états $|1, n\rangle$ et $|2, n\rangle$ d'une même multiplicité avec un taux $2r \cos^2 \varphi \sin^2 \varphi$ (double flèches de la figure 8).

Rappelons que les processus radiatifs d'émission spontanée étudiés dans le chapitre précédent induisent des transitions entre les multiplicités E_n et E_{n-1} (flèches ondulées de la figure 8)

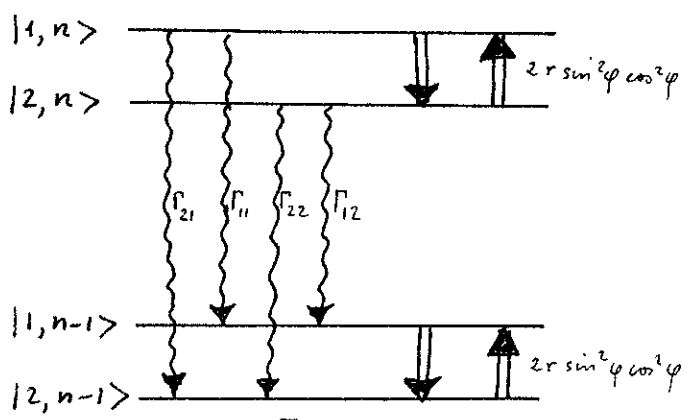


Fig. 8

- Le fait que les transferts associés à des collisions déphasantes se fassent entre états d'une même multiplicité séparés d'une quantité ω petite devant $1/\tau_c$ (à la limite d'impact) correspond bien au caractère élastique ou adiabatique de ces collisions.

- On peut comprendre très simplement le transfert entre $|1, n\rangle$ et $|2, n\rangle$ de la manière suivante :

Partons à $t = -\infty$, de l'atome habillé dans l'état :

$$|1, n\rangle = \cos \varphi |b, n\rangle + \sin \varphi |a, n+1\rangle \tag{X1-19}$$

Un perturbateur passe en ligne droite près de l'atome et déplace les états a et b, de sorte que à $t = +\infty$ l'état de l'atome est devenu :

$$|\psi\rangle = \cos \varphi |b, n\rangle e^{-i \int_{-\infty}^{+\infty} (E_b(t) + n\omega) dt} + \sin \varphi |a, n+1\rangle e^{-i \int_{-\infty}^{+\infty} [E_a(t) + (n+1)\omega] dt} \tag{X1-20}$$

c-à-d, à un facteur de phase global, près :

$$|\psi\rangle = \cos \varphi |b, n\rangle e^{-i \int_{-\infty}^{+\infty} [E_b(t) - E_a(t) - \omega] dt} + \sin \varphi |a, n+1\rangle \tag{X1-21}$$

Comme $|\omega - \omega_0| \tau_c \ll 1$, on peut, dans l'intégrale de (X1-21), remplacer ω par ω_0 , ce qui fait apparaître la phase ϕ introduite en (X1-8) :

$$|\psi\rangle = \cos \varphi |b, n\rangle e^{-i\phi} + \sin \varphi |a, n+1\rangle \tag{X1-22}$$

On voit alors immédiatement que l'amplitude de probabilité de trouver l'atome habillé dans l'état :

$$|2, n\rangle = -\sin \varphi |b, n\rangle + \cos \varphi |a, n+1\rangle \tag{X1-23}$$

est non nulle et vaut :

$$\langle 2, n | \psi \rangle = \sin \varphi \cos \varphi (1 - e^{-i\phi}) \tag{X1-24}$$

Il suffit alors de prendre le carré du module de (X1-24) et de moyenniser sur les paramètres b et \vec{v} de la collision pour trouver que la probabilité de transition par unité de temps de $|1, n\rangle$ à $|2, n\rangle$ vaut $2 \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi \langle 1 - \cos \phi \rangle$, c-à-d d'après (X1-14) $2 \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi$.

⑤ Effet des collisions déphasantes sur le spectre de fluorescence.

- Supposons le désaccord $|\omega_0 - \omega_L|$ grand devant la largeur Doppler Δ mais petit devant $1/\tau_c$.

$$\Delta \ll |\omega_L - \omega_0| \ll 1/\tau_c \tag{X1-25}$$

On peut donc à la fois appliquer les résultats du § 4 concernant le taux de transition $2 \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi$ entre $|1, n\rangle$ et $|2, n\rangle$, d'autre part négliger la variation avec la vitesse v de l'atome de l'angle φ défini par $\tan 2\varphi = \omega_1 / [\omega_0 - \omega_L + kv]$. On néglige tout simplement kv dans la formule précédente.

De plus, on voit que les collisions changeant la vitesse de l'atome à l'intérieur du profil Doppler changent très peu le désaccord entre le laser et l'atome, ce qui permet de les ignorer.

- En l'absence de collisions, les 3 raies en $\omega_L, \omega_0, 2\omega_L - \omega_0$ apparaissant en fluorescence sont expliquées par les diagrammes de la fig 9, 10. Les photons ω_0 et $2\omega_L - \omega_0$ apparaissent toujours par paires de sorte que les 2 raies latérales du spectre de fluorescence ont même intensité.

Fig. 9

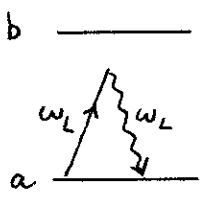


Fig. 10

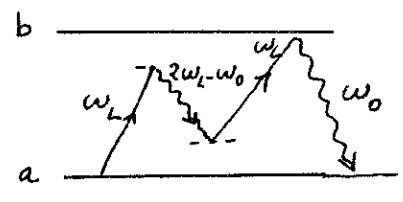
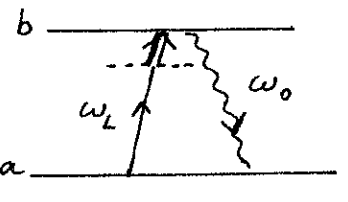


Fig. 11



- En présence de collisions, un nouveau processus de "fluorescence assistée par collisions" apparaît (fig. 11). L'atome absorbe un photon ω_L puis est transféré par collision dans l'état b (double flèche de la fig. 11). Le temps d'un tel processus est précisément $2r \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi$. A partir de l'état b, l'atome réémet un photon ω_0 .

On voit donc qu'en présence de collisions l'intensité de la raie ω_0 sera plus grande : le triplet de fluorescence ne sera plus symétrique.

Calcul plus précis

Calcul des populations réduites stationnaires $\pi_1(\infty)$ et $\pi_2(\infty)$

$$-(\Gamma \cos^4 \varphi + 2r \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi) \pi_1(\infty) + (\Gamma \sin^4 \varphi + 2r \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi) \pi_2(\infty) = 0 \quad (X1-26)$$

En plus des temps de transfert radiatifs ($\sim \Gamma$) il faut tenir compte maintenant des transferts collisionnels ($\sim r$)

La solution normalisée de (X1-26) est obtenue très facilement. En multipliant $\pi_1(\infty)$ par Γ_{21} , $\pi_2(\infty)$ par Γ_{12} , on obtient respectivement les poids des raies en ω_0 et $2\omega_L - \omega_0$ (ce sont bien sur les temps radiatifs Γ_{21} et Γ_{12} qui interviennent ici). Comme l'évolution des populations n'est pas due aux seuls processus radiatifs (cf X1-26) on a bien sur $\Gamma_{21} \pi_1(\infty) \neq \Gamma_{12} \pi_2(\infty)$ de sorte que le spectre n'est plus symétrique.

Plus précisément, on obtient

$$J(\omega_0) \sim \Gamma_{21} \pi_1(\infty) \approx \frac{\Gamma \sin^4 \varphi \cos^4 \varphi + 2r \sin^2 \varphi \cos^6 \varphi}{\Gamma (\sin^4 \varphi + \cos^4 \varphi) + 4r \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi} \quad (X1-27)$$

$$J(2\omega_L - \omega_0) \sim \Gamma_{12} \pi_2(\infty) \approx \frac{\Gamma \sin^4 \varphi \cos^4 \varphi + 2r \sin^6 \varphi \cos^2 \varphi}{\Gamma (\sin^4 \varphi + \cos^4 \varphi) + 4r \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi} \quad (X1-28)$$

Loin de résonance, on a $\text{tg } 2\varphi \approx 2\varphi \approx \frac{\omega_1}{\omega_0 - \omega_L}$ et par suite $\cos \varphi \approx 1$, $\sin \varphi \approx \frac{\omega_1}{2(\omega_0 - \omega_L)}$, de sorte que

$$J(\omega_0) \approx \frac{r}{2\Gamma} \frac{\omega_1^2}{(\omega_0 - \omega_L)^2} \quad (X1-29)$$

$$J(2\omega_L - \omega_0) \approx \frac{1}{16} \frac{\omega_1^4}{(\omega_0 - \omega_L)^4} \quad (X1-30)$$