21.10.03

COURS 2

LES MÉTHODES OPTIQUES

Buts de ce cours

- Présenter les expériences originales utilisant la lumière de résonance absorbée et émise par les atomes pour détecter la résonance magnétique dans les états excités et fondamentaux des atomes
 - Création d'une différence de populations entre les niveaux de la transition hertzienne
 - Détection du changement de ces populations sous l'effet de la résonance magnétique
- 2. Discuter les caractéristiques intéressantes de ces résonances
- 3. Approfondir quelques points délicats
 - Renversement de Majorana
 - Mécanisme d'orientation des spins nucléaires
 - Réduction de l'effet Doppler par effet Dicke

DOUBLE RÉSONANCE

Double résonance Transition $J_f = 0 \rightarrow J_e = 1$



Excitation sélective de $M_e=0$ en polarisation π Transitions RF de $M_e=0$ vers $M_e=\pm 1$

Détection optique de ces transitions RF par observation de la lumière réémise avec une polarisation σ_{+} ou σ_{-}

A.Kastler, J.Brossel C.R.Acad.Sci. <u>229</u>,1213 (1949)

Double résonance Transition $J_f = 1/2 \rightarrow J_e = 1/2$



Excitation sélective de M_e =+1/2 en polarisation σ_+ Transitions RF de M_e =+1/2 vers M_e =-1/2

Détection optique de ces transitions RF par observation de la lumière réémise avec une polarisation σ_{-}

Résultats expérimentaux lsotopes pairs de Hg (transition $0 \rightarrow 1$)



Chaque courbe correspond à une valeur différente de l'amplitude du champ RF. Les courbes en trait plein sont théoriques, les points expérimentaux. Observation d'un renversement aux fortes amplitudes du Champ RF (renversement de Majorana)

> J. Brossel, F. Bitter Phys. Rev. <u>86</u>, 308 (1952)

Calcul de la forme de raie (transition $0 \rightarrow 1$)

L'excitation en raie large et en polarisation π prépare de manière instantanée l'atome dans l'état excité M_e= 0. n_o atomes excités par unité de temps dans cet état. L'atome évolue sous l'effet du champ de radiofréquence B1 et son état devient une superposition linéaire des 3 sousniveaux M_e=-1,0,+1. Cette évolution correspond dans le référentiel tournant à une rotation autour de B₁. En utilisant les matrices de rotation d'un spin 1, on peut donc calculer P(J=1,0,+1;t), probabilité pour que l'atome, initialement dans $M_{e}=0$, se retrouve après un temps t dans l'état $M_{e}=+1$ A cause de la durée de vie radiative $\tau_R = 1 / \Gamma$ des sous niveaux excités, cette probabilité est réduite par $exp(-\Gamma t)$ Le nombre N₊₁ d'atomes dans M=+1 vaut donc en régime stationnaire

$$N_{+1} = n_0 \int_0^\infty P(J = 1, 0, +1; t) \exp(-\Gamma t) dt$$

Résultats du calcul pour une transition $0 \rightarrow 1$

$$N_{+1} = \frac{n_0}{2} \Omega^2 \frac{4\delta^2 + \Gamma^2 + \Omega^2}{\left(\delta^2 + \Gamma^2 + \Omega^2\right)\left(4\delta^2 + \Gamma^2 + 4\Omega^2\right)}$$

 $\delta = \omega - \omega_Z$ Écart entre la fréquence ω du champ RF et la fréquence Zeeman ω_Z (écart entre sous niveaux Zeeman).

Ω Fréquence de Rabi

L'expression de N₊₁ est exacte. C'est elle qui est utilisée pour tracer les courbes théoriques de la figure de la page 2-6. On trouve en particulier que le carré de la largeur de chaque courbe, évaluée à la moitié de la hauteur à résonance, est une fonction linéaire de (B₁)², s'extrapolant à 4 Γ^2 , quand B₁ \rightarrow 0. Il est donc possible de déterminer ainsi la largeur naturelle Γ de l'état excité.

Résultats du calcul pour une transition $1/2 \rightarrow 1/2$

$$N_{-1/2} = \frac{n_{+1/2}}{2} \frac{\Omega^2}{\delta^2 + \Gamma^2 + \Omega^2}$$

Pour une transition $1/2 \rightarrow 1/2$, la courbe de double résonance s'élargit quand Ω croit (élargissement radiatif) en gardant la même forme Lorentzienne.

Par contre, pour une transition $0 \rightarrow 1$, la courbe commence par s'élargir quand Ω croit, puis présente un renversement pour des valeurs suffisamment élevées de Ω (voir figure de la page 2-6).

Peut-on interpréter ce renversement en termes de photons? Une approche perturbative semble mieux adaptée pour aborder ce problème.

Développement des expressions exactes en puissances de Ω

$$N_{-1/2} = \frac{n_{+1/2}}{2} \left[\frac{\Omega^2}{\delta^2 + \Gamma^2} - \frac{\Omega^4}{\left(\delta^2 + \Gamma^2\right)^2} + \dots \right]$$
$$N_{+1} = \frac{n_0}{2} \left[\frac{\Omega^2}{\delta^2 + \Gamma^2} - \frac{\Omega^4}{\left(\delta^2 + \Gamma^2\right)^2} - \frac{3 \Omega^4}{\left(\delta^2 + \Gamma^2\right)\left(4 \delta^2 + \Gamma^2\right)} + \dots \right]$$

Ordre le plus bas (en Ω^2) : Lorentziennes de largeur 2 Γ Ordre suivant (en Ω^4) :

Pour J_e=1, on retrouve le même terme que pour J_e=1/2, décrivant l'élargissement radiatif, plus un nouveau terme décrivant une courbe <u>plus fine</u>, à cause du terme en $1/(4\delta^2+\Gamma^2)$, qui se retranche de la courbe de Lorentz. C'est ce terme qui décrit le renversement.

Interprétation de l'élargissement radiatif en termes de photons (pour J_e=1/2)

Amplitude à l'ordre le plus bas (en Ω)



Transition directe de +1/2 à -1/2

Amplitude à l'ordre suivant (en Ω^3)



Transition de +1/2 à -1/2 suivie d'un aller et retour vers +1/2

C'est l'interférence quantique entre les 2 amplitudes en Ω et Ω^3 , reliant le même état initial au même état final, qui donne dans la probabilité de transition un terme en Ω^4 décrivant l'élargissement radiatif.

Interprétation de renversement de Majorana en termes de photons (pour J_e=1)

Ordre 1 en Ω

Ordre 3 en Ω



Les diagrammes (a) et (b) sont les mêmes que pour $J_e=1/2$ et décrivent l'élargissement radiatif.

Le diagrammes (c) est nouveau. L'atome fait un aller et retour vers l'état M_e =-1 avant d'aller vers M_e =+1. C'est ce diagramme qui est responsable du dernier terme en Ω^4 dans l'expression de $N_{\rm +1}$ page 2-10 .

Conclusion sur le renversement de Majorana

Le renversement de Majorana est dû à un effet d'interférence quantique entre

- un processus à 1 photon au cours duquel l'atome passe directement de $M_e=0$ à $M_e=+1$
- et un processus à 3 photons au cours duquel l'atome effectue au préalable un aller et retour vers l'état M_e= -1 avant d'aller vers M_e=+1

POMPAGE OPTIQUE



L'excitation en polarisation σ_+ excite sélectivement la transition f, - 1 / 2 \rightarrow e, + 1 / 2

L'atome retombe ensuite, soit dans f, -1 / 2, auquel cas il peut recommencer un autre cycle, soit dans f, +1 / 2, par émission spontanée d'un photon π , auquel cas il demeure piégé dans cet état (pas de transition σ^+ partant de f, +1 / 2

A. Kastler, J. de Phys. <u>11</u>, 255 (1950)

Bilan de moment cinétique

Un photon σ^+ disparaît et un photon π apparaît. Le champ perd donc un moment cinétique +ħ par rapport à l'axe z. L'atome passe de f, -1 / 2 à f, +1 / 2 (en passant par e, +1 / 2) et gagne donc un moment cinétique ħ. Transfert de moment cinétique du champ vers l'atome. Si l'efficacité du pompage optique est grande devant celles des processus de relaxation qui tendent à égaliser les populations des 2 sous niveaux fondamentaux, un taux de polarisation proche de 100% peut être atteint.

Détection optique de la polarisation atomique

La quantité de lumière absorbée, et donc aussi réémise, est proportionnelle à la population du sous niveau f, -1 / 2. Elle permet donc de détecter toute variation de cette population due à des collisions ou à des transitions de résonance magnétique entre f, -1 / 2 et f, +1 / 2.

Intérêt des méthodes optiques

Taux de polarisation de spin élevé

- à température ordinaire et dans un champ magnétique bas Dans les expériences usuelles, la différence de population entre les sous niveaux Zeeman, essentielle pour observer la résonance magnétique, est produite par le facteur de Boltzmann exp(- $\Delta E/k_{B}T$) où ΔE est l'écart Zeeman entre les 2 sous niveaux. La faiblesse de ce facteur et compensée par le nombre élevé de spins dans un liquide ou un solide. Avec les méthodes optiques, il devient possible de détecter la résonance magnétique sur un échantillon gazeux. La faible valeur du nombre de spins est compensée par le taux de polarisation élevée.
- Dans un échantillon gazeux, les interactions sont plus faibles. Situation plus pure qui peut être étudiée de manière plus précise.

Intérêt des méthodes optiques (suite)

Grande sensibilité de la détection optique

Une transition de résonance magnétique f, +1 / 2 \rightarrow f, -1 / 2 est détectée, non pas sur le photon RF émis ou absorbé durant la transition, mais sur le photon optique qui peut être absorbé quand l'atome passe dans f, -1 / 2.

Il est beaucoup plus facile de détecter un photon optique qu'un photon de radiofréquence car son énergie est beaucoup plus élevée.

Cet avantage est particulièrement important quand les 2 sous niveaux f, ±1 / 2 correspondent à 2 orientations différentes d'un spin nucléaire. La détection par mesure de la puissance RF absorbée ou émise est sensible à la variation d'énergie magnétique du spin lors de la transition alors que la détection optique repose sur le changement de moment cinétique qui est du même ordre pour un spin électronique ou nucléaire.

Intérêt des méthodes optiques (suite)

Résolution élevée

Dans le domaine des radiofréquences, l'effet Doppler est très faible. Les raies de résonance magnétique ne sont donc pas élargies par cet effet.

La mesure d'un effet Zeeman, d'une structure fine ou hyperfine en spectroscopie optique revient à mesurer la différence de fréquence de 2 raies optiques? Comme ces raies optique ont une largeur Doppler élevée, la résolution de la mesure est beaucoup moins bonne.

Les raies de résonance magnétique correspondant à une structure hyperfine tombent dans le domaine des microondes et leur effet Doppler, de l'ordre de quelques dizaines de KHz, ne sont plus négligeables devant la largeur intrinsèque des raies. L'effet Dicke permet néanmoins de réduire cet effet (voir plus loin)

Intérêt des méthodes optiques (suite)

Situations hors d'équilibre

Réalisation d'inversions de populations

- Un sous niveau Zeeman ou hyperfin peut être plus peuplé qu'un autre sous niveau d'énergie inférieure.
- Situation intéressante pour réaliser un maser
- Des masers Zeeman et hyperfins utilisant le pompage optique ont été effectivement réalisés.

Étude du retour à l'équilibre

- Si le faisceau de pompage est arrêté, le système revient à l'équilibre thermodynamique.
- Étude de ce retour à l'équilibre avec un faisceau sonde.
- Identification des processus de relaxation.

Exemple du pompage optique des isotopes impairs du mercure

Raie d'intercombinaison des isotopes pairs

- ¹⁹⁸Hg, ²⁰⁰Hg, ²⁰²Hg, ²⁰⁴Hg Pas de spin nucléaire Transition $6^{1}S_{0} \rightarrow 6^{3}P_{1}$ à 253,7 nm
 - État fondamental S=0, L=0, J=0 non dégénéré
 - État excité S=1, L=1, J=1 3 sous niveaux

Raie reliant un état singulet (S=0) à un état triplet (S=1), non interdite car le couplage n'est pas LS pur. Durée de vie de l'état excité pas trop courte (~ 10⁻⁷ sec)

Isotopes impairs

¹⁹⁹ Hg	Spin nucléaire	I=1/2
²⁰¹ Hg	Spin nucléaire	I=3/2

Isotope impair ¹⁹⁹Hg

1 seul niveau hyperfin F=I=1/2 dans l'état inférieur 2 niveaux hyperfins F=1/2 et F=3/2 dans l'état supérieur

6¹S₀ — F=1/2

L'isotope pair 204Hg a une fréquence de résonance très proche de celle de la raie $6^{1}S_{0} F=1/2 \rightarrow 6^{3}P_{1} F=1/2$ de ¹⁹⁹Hg et peut donc exciter sélectivement cette raie. Situation identique à celle du cas simple du pompage optique sur une transition $1/2 \rightarrow 1/2$ étudiée plus haut

Exemple de raie de résonance magnétique



Fig. 5. — Résonance magnétique sur ¹⁹⁹Hg orienté.

Atomes de ¹⁹⁹Hg pompés optiquement Détection optique de la raie de résonance magnétique <u>nucléaire</u> dans l'état fondamental Mesure de haute précision d'un moment magnétique nucléaire

B. Cagnac, Thèse, Paris 1960 Ann. de Phys. <u>6</u>, 467 (1960)

Étude de la relaxation longitudinale de noyaux orientés



B. Cagnac, Thèse, Paris 1960 Ann. de Phys. <u>6</u>, 467 (1960)

Fig. 8. — Les transitoires du pompage optique.

ORIENTATION DES SPINS NUCLÉAIRES

Orientation des spins nucléaires par pompage optique

Une situation surprenante

Le champ électrique de l'onde lumineuse incidente est couplé au moment dipolaire électrique des électrons et n'agit pas du tout sur le spin du noyau. Comment le spin nucléaire peut-il être donc orienté par

le pompage optique

Système atomique choisi pour étudier ce problème

Analogue à l'isotope ¹⁹⁹Hg (voir page 2-22) Transition $J_f=0 \rightarrow J_e=1$ avec un spin nucléaire I=1/2 1 niveau hyperfin F=I=1/2 dans l'état fondamental 2 niveaux hyperfins F=1/2 et F=3/2 dans l'état excité séparés par un écart W_{hf} qui est la structure hyperfine de e

Excitation en raie très large

Largeur de raie Δ » Structure hyperfine $W_{\rm hf}$ dans e

Partons de l'état M_I=-1/2 dans f

L'absorption d'un photon σ_+ dure un temps 1/ Δ si bref que l'effet du couplage hyperfin W_{hf} entre I et J est négligeable pendant ce temps

$$W_{hf} imes rac{1}{\Delta} \ll 1$$

A l'issue du processus d'excitation, l'atome est donc dans l'état M_J =+1, M_I =-1/2

Pendant le temps de vie $1/\Gamma$ de e, l'interaction hyperfine couple l'état M_J =+1, M_I = -1/2 à l'état M_J =0, M_I =+1/2. Le spin nucléaire se polarise par interaction avec l'électron polarisé.

L'émission spontanée dure un temps très bref et peut faire passer le système de $M_J=0$, $M_I=+1/2$ à $M_I=+1/2$

Excitation en raie très large (suite)

Description du pompage optique dans la base M_J, M_I



Condition pour avoir un pompage optique efficace

L'effet du couplage hyperfin W_{hf} doit pouvoir se faire sentir pendant le temps 1/ Γ passé dans l'état excité

$$W_{hf} \times (1/\Gamma) \gg 1 \implies W_{hf} \gg \Gamma$$

La structure hyperfine dans e doit être grande devant la largeur naturelle

Excitation en raie très large (suite)

Description du pompage optique dans la base F, M_F



Excitation $\sigma_+ \rightarrow \Delta M_F = +1$

Le sous niveau M_F = -1/2 de f est couplé par excitation σ_+ aux sous niveaux F=1/2, M_F = +1/2 et F=3/2, M_F = +1/2 de e.

Les composantes de fréquences ω_1 et ω_2 dans le spectre de fréquences des paquets d'ondes formant le faisceau excitateur ont une relation de phase bien définie

L'atome est préparé dans une superposition linéaire des 2 états F=1/2, M_F = +1/2 et F=3/2, M_F = +1/2 avec des coefficients égaux aux coefficients de Clebsch-Gordan

Excitation en raie très large (suite)

$\frac{\text{État de l'atome dans la base F, M_F après excitation}}{|\psi_{après}\rangle = \sqrt{2/3} |F = 1/2, M_F = +1/2\rangle + \sqrt{1/3} |F = 3/2, M_F = +1/2\rangle}$ $= |M_J = +1, M_I = -1/2\rangle$

On retrouve bien le résultat donné plus haut dans la base M_J , M_I à condition de bien noter que l'excitation ne prépare pas l'atome dans un mélange statistique des états F=3/2, M_F = 1/2 et F=1/2, M_F = 1/2, mais dans une superposition linéaire de ces 2 états

Étude théorique et expérimentale de ces effets

J-C. Lehmann, Thèse, Paris 1966

- Cd excité sur la transition $5^1S_0 \rightarrow 5^1P_1$ $W_{hf} = 3 \Gamma$ Pompage optique possible
- Zn excité sur la transition $4^1S_0 \rightarrow 4^1P_1$ $W_{hf} \ll \Gamma$ Pompage optique impossible

Excitation en raie étroite

Largeur de raie Δ « Structure hyperfine $\rm W_{hf}$ dans e

Il est possible dans ce cas d'exciter sélectivement le niveau F=1/2 ou le niveau F = 3/2. Cas de l'isotope ¹⁹⁹Hg excité sur la raie $6^1S_0 \rightarrow 6^3P_1$.

L'excitation dure alors un temps suffisamment long pour que l'effet du couplage hyperfin puisse se faire sentir au cours du processus d'excitation. A l'issue de ce processus, le spin nucléaire peut ainsi avoir changé d'état.

Par exemple, une excitation sélective du niveau hyperfin F = 1/2 en polarisation σ_+ fait passer l'atome de l'état $M_I = -1/2$ à l'état F=1/2, $M_F = +1/2$ qui est une superposition linéaire de $M_J = 0$, $M_I = +1/2$ et $M_J = +1$, $M_I = -1/2$

Un autre exemple intéressant Orientation nucléaire de 3He par pompage optique

Les états excités de He sont situés à plus de 20 eV au dessus de l'état fondamental. Pas de sources commodes pour exciter les transitions partant de l'état fondamental.



- Existence d'un niveau métastable 2³S₁ de très longue durée de vie
- Possibilité de pomper optiquement cet état en utilisant la raie 2³S₁→ 2³P_{0,1,2} à 1083 nm
- Peut-on transférer l'orientation nucléaire ainsi obtenue (grâce au couplage hyperfin) à l'état fondamental?

Collisions d'échange de métastabilité

Au cours d'une collision entre un atome dans l'état métastable $2^{3}S_{1}$ et un autre atome dans l'état fondamental $1^{1}S_{0}$, l'excitation électronique peut passer d'un atome à l'autre.

Une telle collision dure un temps très court, si court que le spin nucléaire n'a pas le temps d'évoluer pendant ce temps. Polarisé dans l'état 2^3S_1 d'un atome, il se retrouve polarisé dans l'état fondamental de ce même atome après que ce dernier ait cédé son excitation à un autre atome.

F.D. Colegrove, L.D. Shearer, G.K. Walters, Phys. Rev. <u>132</u>, 2561 (1963) Processus d'orientation très efficace reposant sur une sorte d'extension du principe de Franck-Condon aux spins nucléaires.

(Autre méthode : collisions entre ³He et des alcalins orientés optiquement)

Applications de 3He polarisé

- Fluides quantiques polarisés
- Cibles polarisées pour la physique nucléaire
- Magnétomètres
- IRM des cavités pulmonaires

Images de résonance magnétique des cavités pulmonaires (IRM)



IRM-Proton

IRM-³He

- G.A.Johnson, L. Hedlund, J. MacFall Physics World, November 1998
 - Princeton
- Boston B&W H., St Louis
 - Mainz U., Paris-Orsay, Nottingham U
 - Duke U., U. of Virginia, U. of Pennsylvania. Plusieurs autres centres en cours de création

Centres IRM pour le poumon

EFFET LAMB DICKE



Cas d'un atome libre

L'impulsion ħ**k** communiquée à l'atome par l'émission ou l'absorption d'un photon change l'impulsion initiale **p**_i de cet atome, et donc l 'énergie cinétique correspondante.

La variation d'énergie cinétique de l'atome à l'issue de ce processus d'émission ou d'absorption est la somme d'un terme indépendant de \mathbf{p}_i , qui est l'énergie de recul, et d'un terme $\hbar \mathbf{k}$. \mathbf{p}_i / M, qui est l'éffet Doppler

Cas d'un atome piégé dans un potentiel

Les énergies du centre de masse de l'atome forment dans ce cas un spectre discret.

Comment l'atome encaisse-t-il alors l'impulsion du photon émis et comment cela se traduit-il sur les fréquences émises ou absorbées?

Découplage des variables internes et externes



L'écart entre les 2 niveaux internes a et b de la transition étudiée est supposé insensible au potentiel de piégeage. Les niveaux de vibration E_m , E_n,...de l'atome dans le puits de potentiel de piégeage sont donc les mêmes que l'atome soit dans l'état interne a ou b. Les énergies des photons émis ou absorbés sont donc nécessairement égales à :

 $\hbar \boldsymbol{\omega}_0 + \boldsymbol{E}_n - \boldsymbol{E}_m$

Intensités des raies

Hamiltonien d'interaction H_I

décrivant l'absorption par l'atome d'un photon de vecteur d'onde \vec{k} et de polarisation $\vec{\varepsilon}$

 $(\vec{d}$; dipôle électrique ou magnétique de l'atome, \vec{R} position du centre de masse)

 $H_{I} \propto -\vec{d}.\vec{\varepsilon} e^{i\vec{k}.\vec{R}}$

Intensité Inm de la raie nm

 $I_{nm} \propto \left| \left\langle \boldsymbol{\varphi}_{m} \left| \mathrm{e}^{i \vec{k} \cdot \vec{R}} \left| \boldsymbol{\varphi}_{n} \right\rangle \right|^{2} \right|^{2}$

 φ_n : Fonction d'onde de l'état de vibration n $\langle \varphi_m | e^{i\vec{k}.\vec{R}} | \varphi_n \rangle$ est le produit scalaire de la fonction d'onde φ_m par la fonction d'onde φ_n translatée de $\hbar \vec{k}$ dans l'espace des impulsions ?

Influence de la localisation de l'atome

Caractérisation de cette localisation

 $\begin{array}{l} \Delta \; x: \mbox{Largeur de la distribution spatiale du centre de masse} \\ \lambda = 2\pi \; / \; k: \mbox{Longueur d'onde du champ} \\ \mbox{L'atome est bien localisé si } \Delta x \ll \lambda \end{array}$

Conséquence sur le poids des raies

 $\Delta x \ll \lambda \rightarrow \Delta p \simeq \hbar / \Delta x \gg \hbar / \lambda \simeq \hbar k$

Dans l'espace des p, ϕ_n est translatée d'une quantité ħk très petite devant sa largeur Δp

Les fonctions d'onde ϕ_n et $e^{i\vec{k}.\vec{R}} \phi_n$ sont donc très voisines et $e^{i\vec{k}.\vec{R}} \phi_n$ est quasi-orthogonal à ϕ_m si $n \neq m$

$$I_{n,m\neq n} \ll I_{n,n}$$

Effet Dicke

Lorsqu'un atome est bien localisé dans un potentiel de piégeage ($\Delta x \ll \lambda$) et que les variables externes sont bien découplées des variables internes, la raie la plus intense en émission ou en absorption est la raie à la fréquence atomique ω_0 sans changement d'état externe.

Suppression de l'effet Doppler et de l'énergie de recul Effet discuté pour la première fois par R.H. Dicke [Phys. Rev. <u>89</u>, 472 (1953)] qui considérait un émetteur piégé dans un potentiel carré à une dimension.

Dans un traitement classique, l'atome effectue des va et vient entre les parois du puits, ce qui introduit une modulation de fréquence du rayonnement émis et des bandes latérales dont l'intensité décroît si l'amplitude du va et vient est petite devant λ . Résultat confirmé par un traitement quantique analogue à celui présenté ici.

Cas d'un potentiel harmonique

 $\omega_{v}: \text{ Fréquence de vibration}$ $\Delta x \approx \sqrt{\hbar / M \omega_{v}}$ $\Delta x \ll \lambda \rightarrow \sqrt{\hbar / M \omega_{v}} \ll 1/k$ $\Delta x \ll \lambda \rightarrow E_{rec} = \hbar^{2}k^{2}/2M \ll \hbar\omega_{v}$ $\varepsilon = \frac{E_{rec}}{\hbar\omega_{v}}: \text{ Paramètre de Lamb-Dicke}$

Les raies « à 0 phonon » n \rightarrow n sont les plus intenses si $\mathcal{E} \ll 1$ Les raies « à p phonons » n \rightarrow n ± p ont une intensité en \mathcal{E}^{p}

Analogie avec l'effet Mossbauer étudié également sur le plan théorique par W. Lamb.

Cas d'un atome diffusant au sein d'un gaz tampon

De nombreuses études de transitions hyperfines d'atomes pompés optiquement (pour réaliser des horloges atomiques) sont faites sur des atomes alcalins diffusant au sein d'un gaz rare (He, Ne, Ar, Kr).

Les collisions avec les atomes de gaz rares perturbent très peu les transitions hyperfines des atomes alcalins et permettent d'allonger considérablement (par diffusion) le temps de vol d'une paroi de la cellule à l'autre, temps qui apparaît comme le temps de cohérence de la transition, car les collisions avec les parois perturbent en général la phase de la transition hyperfine.

Comment est modifié l'effet Doppler dans ces conditions?

Expression de la forme de raie $I(\omega)$

Règle d'or de Fermi pour une raie d'émission

$$I(\boldsymbol{\omega}) \propto \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{f} \sum_{i} \pi_{i} \left| \left\langle f \left| H_{I} \right| i \right\rangle \right|^{2} \delta \left(E_{i} - E_{f} - \hbar \boldsymbol{\omega} \right)$$

i(f) : état initial (final) du système atome + gaz tampon, d'énergie $E_i (E_f)$ Mélange statistique d'états initiaux i de poids π_i

Lien avec une fonction de corrélation

$$\delta\left(E_{i}-E_{f}-\hbar\omega\right)=1/(2\pi\hbar)\int_{-\infty}^{+\infty}dt \ e^{-i\omega t} \ e^{i\left(E_{i}-E_{f}\right)t/\hbar}$$

$$\sum_{i}\pi_{i}\sum_{f}\left\langle i\left|H_{I}\right|f\right\rangle\left\langle f\left|H_{I}\right|i\right\rangle e^{i\left(E_{i}-E_{f}\right)t/\hbar}=$$

$$\sum_{i}\pi_{i}\sum_{f}\left\langle i\left|e^{iH_{0}t/\hbar}H_{I}e^{-iH_{0}t/\hbar}\right|f\right\rangle\left\langle f\left|H_{I}\right|i\right\rangle=\sum_{i}\pi_{i}\left\langle i\left|H_{I}(t)H_{I}(0)\right|i\right\rangle=\left\langle H_{I}(t)H_{I}(0)\right\rangle$$

$$I(\omega) \propto \int_{-\infty}^{+\infty}dt \ e^{-i\omega t}\left\langle H_{I}(t)H_{I}(0)\right\rangle$$

Expression de la forme de raie (suite)

$$I(\boldsymbol{\omega}) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}t \, \mathrm{e}^{-i\boldsymbol{\omega}t} \left\langle d_{\boldsymbol{\varepsilon}}(t) \mathrm{e}^{i\vec{k}\cdot\vec{R}(t)} d_{\boldsymbol{\varepsilon}}(0) \mathrm{e}^{-i\vec{k}\cdot\vec{R}(0)} \right\rangle$$

Si les variables internes (d_{ϵ}) sont découplées des variables externes (R), la fonction de corrélation précédente se factorise

$$\left\langle d_{\varepsilon}(t)d_{\varepsilon}(0)\right\rangle \left\langle e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}(t)}e^{-i\vec{k}\cdot\vec{R}(0)}\right\rangle$$
$$\left\langle d_{\varepsilon}(t)d_{\varepsilon}(0)\right\rangle = \left\langle d_{\varepsilon}^{2}\right\rangle e^{i\omega_{0}t}$$
$$I(\omega) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} dt \ e^{-i(\omega-\omega_{0})t} \left\langle e^{i\vec{k}\cdot\vec{R}(t)}e^{-i\vec{k}\cdot\vec{R}(0)}\right\rangle$$

La moyenne apparaissant au second membre porte sur les variables externes de l'atome et sur celles du gaz tampon au sein duquel l'atome diffuse.

Cas d'un atome libre

Pas de gaz tampon. Pas de potentiel de piégeage

L'intégration des équations de Heisenberg donne :

$$\vec{R}(t) = \vec{R}(0) + \frac{\vec{P}(0)}{M}t$$
$$\vec{P}(t) = \vec{P}(0)$$

 $\begin{bmatrix} \vec{k}.\vec{R}(0),\vec{k}.\vec{P}(0) \end{bmatrix} = i\hbar k^2 \text{ commute avec } \vec{R}(0),\vec{P}(0)$ $e^{A+B} = e^A e^B e^{-\frac{1}{2}[A,B]} \text{ si } [[A,B],A] = [[A,B],B] = 0$ (Théorème de Glauber). On en déduit :

 $\mathbf{e}^{i\vec{k}.\vec{R}(t)} \,\mathbf{e}^{-i\vec{k}.\vec{R}(0)} = \mathbf{e}^{i\vec{k}.\vec{P}(t)/M} \,\mathbf{e}^{-\hbar^2 k^2 t/2M}$ $I(\omega) \propto \delta \left[\omega - \omega_0 - \hbar^2 k^2 / 2M + \vec{k}.\langle \vec{v} \rangle \right]$

On retrouve bien l'effet Doppler et l'énergie de recul

Atome diffusant au sein d'un gaz Calcul semiclassique

On néglige les commutateurs entre R(t) et R(0)

$$\mathbf{e}^{i\vec{k}.\vec{R}(t)} \, \mathbf{e}^{-i\vec{k}.\vec{R}(0)} \simeq \mathbf{e}^{i\vec{k}.[\vec{R}(t)-\vec{R}(0)]}$$

et on utilise la théorie classique du mouvement Brownien décrivant la diffusion de la particule.

$$\left\langle \mathrm{e}^{i\vec{k}\cdot\left[\vec{R}(t)-\vec{R}(0)\right]}\right\rangle \simeq \int \mathrm{d}^{3}r \, \mathrm{e}^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \, W\left(\vec{r},t\right)$$

 $W(\vec{r},t)$: Fonction de distribution de la position de la particule partie de $\vec{r} = \vec{0}$ à t = 0.

A des facteurs numériques près (2, π ,..)

 $W(\vec{r},t) \simeq e^{-r^2/Dt}$

 $D \simeq \ell v$: Coefficient de diffusion

- ℓ : Libre parcours moyen
- v : Vitesse quadratique moyenne

Atome diffusant au sein d'un gaz Calcul semiclassique (suite)

La TF d'une Gaussienne est aussi une Gaussienne. Donc, et toujours à des facteurs numériques près:

$$\left\langle \mathsf{e}^{i\vec{k}\cdot\left[\vec{R}(t)-\vec{R}(0)\right]} \right\rangle \simeq \int \mathsf{d}^{3}r \; \mathsf{e}^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \; \mathsf{e}^{-r^{2}/Dt} \simeq \mathsf{e}^{-k^{2}Dt}$$

La forme de raie I(ω) est la TF en $\omega - \omega_0$ par rapport à t de cette fonction

$$I(\omega) \simeq \frac{1}{\left(\omega - \omega_0\right)^2 + \left(k^2 D\right)^2}$$

La raie est une Lorentzienne, centrée en $\omega=\omega_{0}$, de largeur

$$\gamma = \mathbf{k}^2 \mathbf{D} = \mathbf{k}^2 \ell \mathbf{v}$$

Rétrécissement par le mouvement

Pour un gaz d'atomes libres, la forme de raie est une Gaussienne, dont la largeur est la largeur Doppler

$\Delta \nu_{\rm D} \simeq {\it k} \, {\it v}$

Lorsque les atomes diffusent au sein d'un gaz tampon, la raie devient une Lorentzienne dont la largeur

 $\gamma \simeq \mathbf{k}^2 \ell \, \mathbf{v} = \mathbf{k} \, \mathbf{v} \, \mathbf{k} \ell \simeq \Delta \nu_D \, \frac{\ell}{\lambda} \ll \Delta \nu_D$

est plus petite que la largeur Doppler par un facteur égal au rapport du libre parcours moyen à la longueur d'onde, d'autant plus petit que la pression du gaz tampon est élevée.

A chaque collision, le changement de vitesse de l'atome produit un changement du déplacement Doppler (sans déphasage), mais ces changements successifs se moyennent en partie pour donner une largeur $\gamma \ll k v$