

# Modèle de propagation non une vapeur atomique

## Modèle de propagation non résonnante de faisceaux laser dans une vapeur atomique



FR0400966

PASCAL GAUTHIER  
ANTOINE GODARD\*  
JACQUES DE LAMARE  
MICHEL COMTE  
(DCC/DPE/SLCS - CEA SACLAY)  
\*STAGIAIRE MILITAIRE

PASCAL GAUTHIER



JACQUES DE LAMARE



MICHEL COMTE



### INTRODUCTION

Le problème de l'interaction d'un rayonnement électromagnétique avec un système atomique à deux niveaux est l'un des plus fondamentaux de l'optique quantique [1]. Il est aussi au cœur du procédé d'enrichissement Silva, qui implique la propagation sur de longues distances d'impulsions laser dans une vapeur d'uranium.

Lorsqu'un faisceau laser suffisamment intense se propage dans un milieu atomique, des échanges d'énergie ont lieu entre le champ de rayonnement et le système matériel. Ces échanges sont d'autant plus importants que la fréquence du laser est proche de celle d'une transition de l'atome. Les caractéristiques temporelle, spatiale ou spectrale de l'impulsion peuvent alors être significativement modifiées. Sur le plan théorique, les équations de Maxwell-Bloch [1] permettent une description rigoureuse de l'évolution du système atomique et des différentes restructurations subies par l'impulsion laser au fur et à mesure de sa propagation. Cependant, leur résolution numérique s'accompagne très souvent de temps de calcul élevés, pouvant parfois s'avérer rédhibitoires.

L'uranium naturel est composé majoritairement des isotopes  $^{235}\text{U}$  et  $^{238}\text{U}$ . Les lasers étant accordés dans le cadre du procédé Silva sur les fréquences des transitions de l'isotope  $^{235}\text{U}$ , ils se trouvent décalés de quelques GHz de celles de l'isotope  $^{238}\text{U}$ . Cependant, le milieu étant 140 fois plus peuplé en  $^{238}\text{U}$  qu'en  $^{235}\text{U}$ , la réaction de l'isotope majoritaire sur les faisceaux laser - bien que de nature très différente - peut être tout aussi importante que celle de l'isotope cible. Comme d'autre part, le pas numérique d'intégration de l'équation de propagation est déterminé principalement par la présence de l'isotope non résonnant, le développement d'un modèle simplifié (baptisé quasi-adiabatique) de l'interaction non-résonnante rayonnement-atome a été mené.

Après une présentation des grandes lignes de ce modèle, ses résultats pour un cas d'école sont comparés à ceux d'un calcul de référence conduit dans le cadre du formalisme de Maxwell-Bloch.

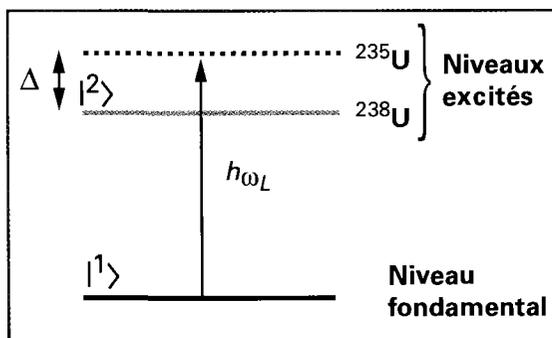
### LES ÉQUATIONS DU MODÈLE

Soit donc une onde laser de fréquence centrale  $\omega_L$  se propageant dans un milieu atomique non ionisé. La fréquence de l'onde est décalée d'une quantité  $\Delta$  de celle d'une transition dipolaire électrique du système atomique (figure 1).

Pour une onde plane (situation considérée dans cet article), l'équation de propagation paraxiale portant sur les enveloppes lentement variables du champ  $E$  et de la polarisation du milieu  $P$  s'écrit (dans un référentiel en translation à la vitesse  $c$  de la lumière dans le vide) :

$$\frac{\partial E(z,t)}{\partial z} = -\frac{i\omega_L}{2\varepsilon_0 c} P(z,t) \quad (1)$$

Sous l'action du champ incident  $E$ , le milieu est supposé se comporter comme un dipôle électrique 'moyen', au sens de la statistique des atomes le constituant. Les principes de base de la mécanique quantique indiquent que ce dipôle électrique moyen, terme source de l'équation de propagation, est proportionnel au terme de cohérence atomique, produit des amplitudes de probabilité de présence  $c_1$  et  $c_2$  de l'atome sur chacun des deux niveaux de la transition considérée. Un calcul rigoureux de  $P$  implique donc la connaissance préalable des amplitudes  $c_1$  et  $c_2$ , solutions des équations de Bloch.



**Figure 1**  
Diagramme énergétique d'un atome à deux niveaux. La fréquence de l'onde laser est supposée être décalée d'une quantité  $\Delta$  du niveau supérieur  $|2\rangle$  de la transition. Cette situation est représentative de celle rencontrée sur Silva : les fréquences des faisceaux laser, accordées sur les fréquences des transitions électroniques de l'isotope  $^{235}\text{U}$ , diffèrent de quelques GHz de celles des transitions de l'isotope majoritaire du procédé.

Dans notre modèle, la polarisation atomique est déterminée de manière très différente : introduisant un indice de réfraction complexe  $\eta(\omega)$  dépendant de la fréquence (ou de manière équivalente la susceptibilité non linéaire  $\chi(\omega)$ ), une analyse dans l'espace de Fourier indique que la polarisation  $P$  peut se mettre sous la forme :

$$P(z,t) = \varepsilon_0 \sum_{n=0}^{+\infty} \frac{(-i)^n}{n!} \left( \frac{d^n \chi}{d \omega^n} \right)_{\omega_L} \frac{\partial^n E(z,t)}{\partial t^n} \quad (2)$$

Pour déterminer  $\chi(\omega)$ , et donc  $P$ , une hypothèse de quasi-adiabaticité est appliquée : les enveloppes temporelles du champ et de l'inversion de population entre les niveaux bas et haut de la transition atomique sont supposées varier peu sur une durée  $1/\Delta$ . Dans cette limite, il vient en première approximation : [2,3]

$$\chi \approx \chi_{\text{adia}} = -\frac{N |\mu|^2}{\varepsilon_0 \hbar \Delta} \frac{|\Delta|}{\sqrt{|\Omega_R|^2 + \Delta^2}} \quad (3)$$

où  $N$  représente la densité d'atomes,  $\mu$  le moment dipolaire de la transition et  $\Omega_R = \frac{\mu E}{\hbar}$  la fréquence de Rabi.

## VALIDATION DU MODÈLE QUASI-ADIABATIQUE SUR UN CAS D'ÉCOLE

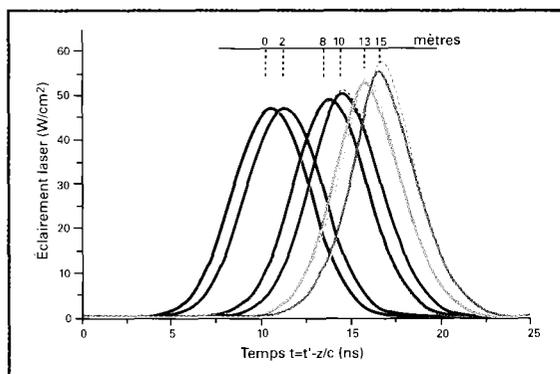
A titre d'illustration du modèle, l'évolution du profil temporel initialement gaussien ( $\tau_{\text{TMH}} = 5$  ns) d'une impulsion laser au cours de sa propagation dans une vapeur atomique de densité  $N = 4.10^{13}$  at/cm<sup>3</sup> est présentée sur la figure 2. Le désaccord entre la fréquence  $\omega_L$  du laser et celle de la transition atomique  $\omega_0$  a été fixé à  $\Delta = \omega_L - \omega_0 = +6$  GHz. A l'entrée de l'impulsion dans le milieu, la valeur crête de la fréquence de Rabi valait  $\Omega_c = 2$  GHz. Les résultats du modèle quasi-adiabatique - pour lequel seuls les termes  $0 \leq n \leq 3$  du développement (2) ont été retenus - sont comparés à ceux obtenus en résolvant le système complet des équations de Maxwell-Bloch.

Un retard global de l'impulsion, consécutif à son interaction avec le milieu atomique, est tout d'abord constaté. Il correspond à la différence entre la vitesse de groupe  $v_g$  de l'onde laser et sa vitesse de phase  $v_\phi$ , cette dernière étant très voisine de  $c$ . Cet effet est mathématiquement représenté par le terme  $n = 1$  du développement (2) de

# Modèle de propagation non résonnante de faisceaux laser dans une vapeur atomique

la polarisation atomique. Dans les premiers mètres de propagation ( $z \leq 2$  m), le régime d'interaction est essentiellement linéaire et la vitesse de groupe ne dépend pas significativement de l'éclairement. Aux distances de propagation supérieures, le caractère non linéaire de l'interaction a des conséquences de plus en plus marquées sur le profil temporel d'éclairement : il conduit à un raidissement progressif du front de montée de l'impulsion et à une élévation de son amplitude de crête, de l'ordre 15 % après 15 mètres de propagation. Le scénario de cette restructuration temporelle de l'impulsion est le suivant : la dépendance par rapport à  $|E(t)|^2$  de la susceptibilité  $\chi$  (Equ. 3) induit une modification du profil temporel de la phase du champ au cours de la propagation (terme  $n = 0$  du développement (2)). Cette modulation

de phase est progressivement convertie en une modulation d'intensité par suite de l'effet de dispersion de la vitesse de groupe (terme  $n = 2$ ). A mesure que l'éclairement crête croît, la non linéarité se renforce. Dans ces conditions, la vitesse de groupe n'est plus uniforme sur l'ensemble du profil d'éclairement (le terme  $n = 1$  prévoit en particulier que les zones d'intensité maximale se propagent aussi plus vite), ce qui contribue à 'raidir' le front montant de l'impulsion. Les termes de rang supérieur à 2 apportent des corrections mineures à la situation qui vient d'être décrite.



**Figure 2**

Évolution du profil temporel d'une impulsion laser de largeur à mi-hauteur initiale  $\tau_{LTMH} = 5$  ns au fur et à mesure de sa propagation dans une vapeur atomique de densité  $N = 4.10^{13}$  at/cm<sup>3</sup>. Le temps est mesuré dans un référentiel en translation à la vitesse  $c$  de la lumière dans le vide. Le désaccord entre la fréquence  $\omega_L$  du laser et celle de la transition atomique  $\omega_0$  a été fixé à  $\Delta = \omega_L - \omega_0 = +6$  GHz. Pour chaque plan de propagation, les résultats du calcul quasi-adiabatique (traits pleins) sont comparés à ceux obtenus en résolvant les équations de Bloch (pointillés). Pour  $z \leq 8$  m, les courbes correspondant aux deux modèles restent confondues.

Conformément à la figure 2, le désaccord résiduel entre les formalismes de Bloch et quasi-adiabatique porte principalement sur l'amplitude de crête de l'éclairement. Cet écart, de l'ordre du % à 15 m, augmente logiquement avec la distance de propagation : la condition de variation lente du champ sur laquelle repose le modèle quasi-adiabatique est en effet d'autant moins vérifiée que l'impulsion se comprime temporellement.

## CONCLUSION

Un modèle original de propagation non résonnante de faisceaux laser dans une vapeur atomique a été mis au point. Il repose sur une condition de variation lente du champ, dont des études ont montré en particulier qu'elle n'était pas ou peu mise en défaut dans les conditions d'interaction propres au procédé Silva. Il permet de rendre compte de l'ensemble des restructurations temporelles (modulations des profils temporels de phase et d'amplitude, retard à la propagation,...) subies par une impulsion laser au cours de sa propagation. Son emploi s'accompagne généralement de temps de calculs de plusieurs ordres de grandeur inférieurs à ceux associés à un traitement de l'interaction laser-matière par le formalisme de Maxwell-Bloch.

## RÉFÉRENCES

- [1] Voir, par exemple, L. ALLEN ET J. H. EBERLY "Optical Resonance and Two-Level Atoms" (Dover, New-York, 1987) ; B. W. SHORE "The Theory of Coherent Atomic Excitation" (Wiley, New-York, 1990)
- [2] M. E. CRENSHAW AND C. D. CANTRELL "Rabi Oscillations in an Infinite-order Correction to the Adiabatic Approximation for a Two-Level System" Phys. Rev. A 37, 3338 (1988)
- [3] M. D. CRISP "Adiabatic-following Approximation" Phys. Rev. A 8, 2128 (1973)

# Extended Abstract

## ***Near resonant propagation of laser pulse in an uranium vapour***

PASCAL GAUTHIER  
MICHEL COMTE  
JACQUES DE LAMARE  
ANTOINE GODARD

*The SILVA enrichment process relies on the difference in the excitation frequencies of the electron transitions between uranium isotopes  $^{235}\text{U}$  and  $^{238}\text{U}$ . Light emitted by lasers can be tuned exactly to these frequencies, resulting in the selective excitation and ionization of the target isotope, namely isotope  $^{235}\text{U}$ . Subsequently, ions are separated from the  $^{238}\text{U}$  atoms by an electrical field and received on dedicated collectors [1].*

*In a SILVA plant, laser beams would have to propagate over a long distance in the work-medium, resulting in possible severe temporal and spatial beam distortions. Such effects may drastically reduce the efficiency of the photo-ionization and hence require close attention.*

*Coupled Maxwell-Schrödinger equations describe changes in the material system as well as the temporal and spatial reshaping of the laser pulses as they propagate through uranium vapour. This system of equations combines Maxwell's wave equation with Schrödinger quantum-mechanical description of field-matter interaction. However, the method suffers from a serious drawback: in the SILVA conditions, it leads to prohibitive computation times.*

*In this context, this article presents an alternative formulation for the induced atomic polarization of an undamped two-level system (Figure 1) obviating the need to solve the Schrödinger equation to describe the propagation of a laser pulse in a near resonant atomic vapor. The method is based on the use of an intensity dependent index of refraction inferred from a quasi-adiabatic approximation [2, 3]. As an example, the final section of the paper discusses the complex time reshaping undergone by a 5 ns near resonant (frequency shift  $D = 6$  GHz) laser pulse as it propagates through an optically dense medium ( $N = 4.10^{13}$  at/cm<sup>3</sup>). In this case, the quasi-adiabatic and Schrödinger models are shown to be in fairly good agreement (Figure 2).*