



HAL
open science

Pompage optique des centres F dans KBr

N.V. Karlov, J. Margerie, Y. Merle-d'Aubigné

► **To cite this version:**

N.V. Karlov, J. Margerie, Y. Merle-d'Aubigné. Pompage optique des centres F dans KBr. Journal de Physique, 1963, 24 (10), pp.717-723. 10.1051/jphys:019630024010071700 . jpa-00205553

HAL Id: jpa-00205553

<https://hal.science/jpa-00205553v1>

Submitted on 4 Feb 2008

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.

POMPAGE OPTIQUE DES CENTRES F DANS KBr

Par N. V. KARLOV,
Institut Lebedev, Moscou

J. MARGERIE,
École Normale Supérieure, Paris

et

Y. MERLE-D'AUBIGNÉ,
Laboratoire de Physique Générale, S. A. C. M., Grenoble.

Résumé. — On a étudié en présence d'un champ magnétique et en lumière polarisée circulairement, l'absorption optique des centres F du KBr. On en a déduit que la bande F possède une structure. La méthode optique utilisée permet d'étudier sur des échantillons très peu concentrés certaines propriétés de l'état fondamental telles que la relaxation spin-réseau. Les conditions d'inversion de populations dans l'état fondamental par pompage optique ont été étudiées en fonction de l'intensité lumineuse et du champ magnétique.

Abstract. — The optical absorption of F -centers in KBr has been studied in a magnetic field with circularly polarized light. The conclusion of this study is the existence of a structure in the F -band. The optical method we used permits the study of some properties of the ground state (e.g. Spin lattice relaxation) even with very dilute samples. The conditions for inverting the populations of the ground sublevels by optical pumping have been studied as a function of the static magnetic field and the pumping light intensity.

I. Introduction. — En vue d'étendre le domaine d'application des masers dans les gammes millimétriques et submillimétriques, il est intéressant d'étudier les possibilités de pompage optique dans les solides. Récemment, des masers à rubis pompés optiquement ont été décrits [1], [2]. Dans ces expériences, la source pour le pompage est un laser à rubis pulsé, dont la faible largeur spectrale permet d'exciter sélectivement un des sous-niveaux du fondamental. Une étude générale [3], [4], [5] des possibilités de pompage optique sur des centres paramagnétiques dans les cristaux montre qu'il est souhaitable de pomper avec une transition ayant une grande force d'oscillateur, donc en utilisant une bande d'absorption large. Le retour à l'état fondamental faisant intervenir des processus non radiatifs, a de grandes chances de s'effectuer avec la même vitesse vers les différents sous-niveaux fondamentaux $|i\rangle$. Un pompage de type Dehmelt est alors seul possible. Pour qu'il puisse réaliser une inversion de populations dans l'état fondamental, il faut qu'il existe des coefficients d'absorption différents k_i^p des divers sous-niveaux $|i\rangle$ pour la lumière de pompage de polarisation p et de fréquence ν . L'échantillon doit donc posséder les 3 propriétés suivantes : temps de relaxation spin-réseau long ; grande force d'oscillateur ; coefficients d'absorption k_i^p différents pour les divers sous-niveaux $|i\rangle$.

Le succès des expériences de pompage optique en lumière non polarisée (spin heating) [6], [7] montre que les centres F des halogénures alcalins possèdent les deux premières de ces propriétés. Reste à savoir si ils possèdent la troisième. Un essai, tenté par

Wieder et Hyde [8] sur KCl s'est révélé négatif. Par contre, les expériences que nous allons décrire ont montré que, pour les centres F de KBr, si on envoie de la lumière polarisée circulairement parallèlement au champ, c'est, suivant la longueur d'onde utilisée, l'un ou l'autre des sous-niveaux Zeeman qui absorbe le plus. Une structure non résolue par absorption optique ordinaire a ainsi pu être mise en évidence dans la bande F . La même expérience fournit également (effet trigger) un moyen sensible d'étude de certaines propriétés du fondamental, même sur des échantillons très peu concentrés : Par exemple, temps de relaxation spin-réseau en fonction du champ magnétique directeur. A partir des résultats obtenus sur l'état excité et des temps de relaxation mesurés pour le fondamental, les conditions de pompage optique ont été étudiées théoriquement et vérifiées expérimentalement.

II. Méthode de mesure. — On observe les variations de la lumière σ^+ transmise à travers l'échantillon lorsqu'on fait varier les populations des deux sous-niveaux du fondamental. Pour faire varier ces populations de façon connue, on fait varier le champ magnétique et on attend que l'équilibre de Boltzmann soit atteint. Pour égaliser les populations des sous-niveaux Zeeman, on peut soit annuler le champ H_0 , soit saturer la résonance paramagnétique électronique des centres F située dans la bande X pour un champ continu H_0 de l'ordre de 3 000 Oe ($g = 1,99$).

Si I_0 est l'intensité de la lumière incidente et I l'intensité de la lumière transmise, on définit pour

un rayonnement de polarisation p et de nombre d'onde ν le coefficient d'absorption $k^{\nu p}$ tel que

$$I = I_0 e^{-k^{\nu p} l}$$

(l : épaisseur de l'échantillon).

Comme l'état fondamental des centres F possède 2 sous-niveaux $|1/2\rangle$ et $|-1/2\rangle$, on a :

$$k^{\nu p} = \omega_{1/2} k_{1/2}^{\nu p} + \omega_{-1/2} k_{-1/2}^{\nu p}.$$

$\omega_{1/2}$ et $\omega_{-1/2}$ sont les populations relatives des sous-niveaux $|1/2\rangle$ et $|-1/2\rangle$.

Le fondamental étant un doublet de Kramers, la symétrie ⁽¹⁾ exige que :

$$k_{1/2}^{\sigma+, \nu} = k_{-1/2}^{\sigma-, \nu} \text{ et } k_{1/2}^{\sigma-, \nu} = k_{-1/2}^{\sigma+, \nu}.$$

Il est clair que deux mesures de $k^{\nu p}$ faites sur le système avec deux répartitions de populations ω différentes et connues permettent d'obtenir les valeurs des coefficients d'absorption individuels $k_{1/2}^{\nu p}$ et $k_{-1/2}^{\nu p}$. On étudie donc l'effet sur la lumière transmise I d'un changement des populations des niveaux $|1/2\rangle$ et $|-1/2\rangle$

$$\frac{\Delta I}{I} = \frac{I' - I}{I} = e^{-l \Delta k^{\nu p}} - 1 \simeq -l \Delta k^{\nu p} \quad (1)$$

dans la plupart de nos expériences $l \Delta k^{\nu p} \ll 1$.

La durée de vie de l'état excité étant très faible [9], sa population reste négligeable, donc si $\omega'_{1/2}$ et $\omega'_{-1/2}$ sont les nouvelles populations relatives des états $|1/2\rangle$ et $|-1/2\rangle$ on a

$$\omega'_{1/2} - \omega_{1/2} = -(\omega'_{-1/2} - \omega_{-1/2})$$

et l'équation (1) devient :

$$\frac{\Delta I}{I} \simeq -l(\omega'_{1/2} - \omega_{1/2})(k_{1/2}^{\nu p} - k_{-1/2}^{\nu p}). \quad (2)$$

La formule (2) peut être utilisée de deux manières :

a) On fait varier de façon connue les populations relatives des deux sous-niveaux (par exemple en réalisant l'équilibre de Boltzmann pour deux valeurs opposées du champ) on mesure le $\Delta I/I$ correspondant et on en déduit la différence $k_{1/2}^{\nu p} - k_{-1/2}^{\nu p}$.

b) Une fois connus les coefficients $k_{1/2}^{\nu p}$ et $k_{-1/2}^{\nu p}$, l'intensité de la lumière transmise permet de mesurer de façon permanente les populations respectives des niveaux $|1/2\rangle$ et $|-1/2\rangle$ et d'analyser ainsi un processus de relaxation dans le niveau fondamental ou, si le faisceau lumineux est intense, le processus de pompage optique.

MONTAGE EXPÉRIMENTAL. — Le montage expérimental (voir *fig. 1*) est une modification de celui

⁽¹⁾ Dans la mesure où les $g \beta H_0$ des états excités et fondamentaux restent très faibles devant la largeur de la transition optique, ce qui est le cas de toutes nos expériences.

employé par Brossel et Margerie [10] pour étudier la bande d'absorption verte du rubis. L'échantillon est placé dans une cavité résonnante bande X rectangulaire percée sur sa grande face pour permettre le passage du faisceau lumineux. L'échan-

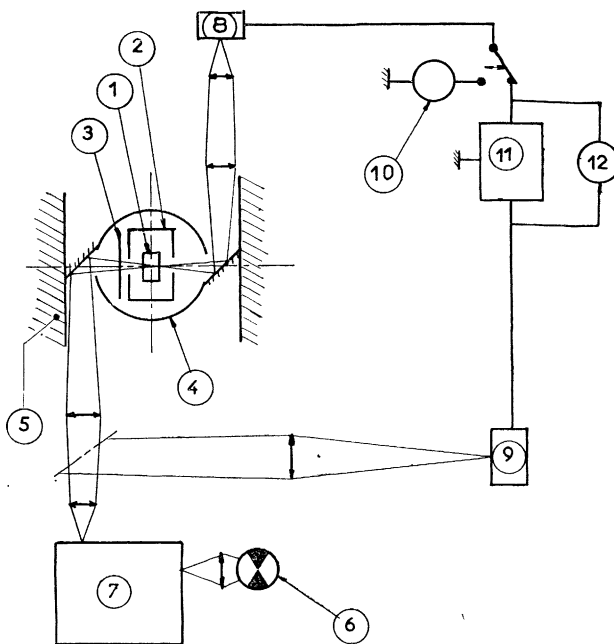


FIG. 1. — Montage expérimental.

(1) Échantillon. — (2) Cavité résonnante bande X. — (3) Polariseur circulaire. — (4) Cryostat à hélium. — (5) Electroaimant. — (6) Lampe à incandescence. — (7) Monochromateur Bausch et Lomb. — (8), (9) Photomultiplicateurs 1P 21. — (10) Galvanomètre. — (11) Pont de résistances. — (12) Galvanomètre enregistreur.

tillon et la cavité sont dans un bain d'hélium maintenu au-dessous du point λ pour éviter l'ébullition. L'ensemble est placé dans l'entrefer d'un électroaimant Varian 12". Un jeu de miroirs et de lentilles permet de faire arriver le faisceau lumineux parallèlement au champ. La source lumineuse est une lampe à incandescence associée à un monochromateur Bausch et Lomb.

Le polariseur circulaire fabriqué par la « Polaroid Company » est placé dans le bain d'hélium contre la fenêtre d'entrée de la cavité. La lumière transmise est détectée grâce à un photomultiplicateur 1P 21. Pour minimiser les fluctuations rapides et les dérives de la lampe, une partie de l'énergie du faisceau lumineux est réfléchi par un miroir semi-transparent pour former un faisceau de référence que l'on concentre sur un deuxième photomultiplicateur 1P 21. Pour mesurer l'intensité lumineuse moyenne transmise, on mesure directement le courant du premier photomultiplicateur. Pour mesurer de faibles variations de l'intensité lumineuse, les courants de sortie des deux photomultiplicateurs sont injectés en opposition dans un pont de résis-

tances réglé de telle sorte que le courant mesuré dans le galvanomètre soit nul en l'absence de champ magnétique. Avec ce dispositif le bruit exprimé en pour cent de l'intensité lumineuse transmise est inférieur à 0,1 %.

PRÉPARATION DES ÉCHANTILLONS. — Les monocristaux de KBr ont été fournis par « Quartz et Silice ». Ils ont été colorés par addition suivant une méthode maintenant classique [11]. Le cristal est chauffé à 550 °C pendant 12 heures dans un tube

en présence de vapeur de potassium. A la sortie du four le tube est plongé dans un bain de pétrole et cassé. On obtient ainsi une « trempe » efficace qui évite la formation de colloïde. Les cristaux sont ensuite clivés aux dimensions voulues en lumière rouge, puis conservés dans l'obscurité jusqu'à leur utilisation.

Les expériences ont porté sur trois échantillons dont les caractéristiques sont résumées dans le tableau I ci-dessous.

TABLEAU I

ÉCHANTILLONS	A	B	C
Épaisseur (cm)	0,62	0,475	0,178
Coefficient d'absorption au maximum de la bande (cm ⁻¹) à 1,85 °K	2,9	2,8	30
Largeur de la bande à mi-hauteur (cm ⁻¹) à 1,85 °K	1 700	1 800	1 700
N : concentrations évaluées (nombre de centres/cm ³)	6 × 10 ¹⁵	6 × 10 ¹⁵	6,6 × 10 ¹⁶
$\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_{\max}$ (voir paragraphe III) $\left\{ \begin{array}{l} T = 1,85^\circ \\ \nu = 17\,300\text{ cm}^{-1} \\ H_0 = \pm 8\,810\text{ Oe} \end{array} \right.$	6,52 %	5,00 %	21,3 %
$(k_{1/2}^{\sigma^+,\nu} - k_{-1/2}^{\sigma^+,\nu}) / (k_{1/2}^{\sigma^+,\nu} + k_{-1/2}^{\sigma^+,\nu})$ pour $\nu = 17\,300\text{ cm}^{-1}$	- 8,9 %	- 9,3 %	- 9,1 %
Temps de relaxation spin réseau	$\left\{ \begin{array}{l} T_1 T \approx H_0^{-2} \\ T_1 T \approx 410\text{ s }^\circ\text{K} \\ \text{pour } H_0 = 3\,000\text{ Oe} \end{array} \right.$		Faible dépendance en champ

III. Variation des coefficients d'absorption des sous-niveaux Zeeman en fonction de la longueur d'onde. — Pour KBr la bande F ne possède pas de structure apparente à la température de l'hélium liquide. Le sommet de la bande d'absorption est trouvé pour $\nu = 16\,700\text{ cm}^{-1}$; la largeur de la bande à mi-hauteur est de $1\,700\text{ cm}^{-1}$.

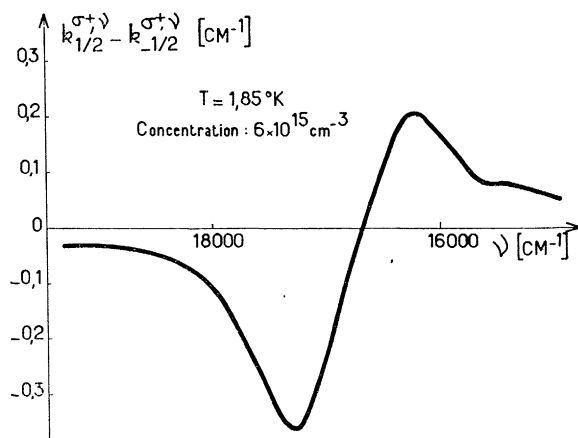


FIG. 2,

La variation $\Delta I/I$ lorsque le champ magnétique continu H_0 prend les valeurs $+8810\text{ Oe}$ et -8810 Oe a été étudiée à la température $T = 1,85\text{ °K}$ en fonction de la fréquence lumineuse. Les populations

des sous-niveaux à l'équilibre thermique sont calculées dans ces conditions et la formule (2) permet de calculer les différences $k_{1/2}^{\sigma^+,\nu} - k_{-1/2}^{\sigma^+,\nu}$ (fig. 2). Les mesures ont été effectuées pour les trois échantillons avec un bon accord entre les résultats : Pour chaque ν , le rapport des $3(k_{1/2}^{\sigma^+,\nu} - k_{-1/2}^{\sigma^+,\nu})$ mesurés est égal au rapport des k^{σ^0} (cf. avant dernière ligne du tableau I). De petits écarts peuvent être attribués aux tensions internes qui dépolarisent la lumière (2). La connaissance de $k_{1/2}^{\sigma^+,\nu} - k_{-1/2}^{\sigma^+,\nu}$ et du coefficient d'absorption mesuré en champ nul $k^{\sigma^0} = 0,5(k_{1/2}^{\sigma^+,\nu} + k_{-1/2}^{\sigma^+,\nu})$ permet de calculer les coefficients d'absorption $k_{1/2}^{\sigma^+,\nu}$ et $k_{-1/2}^{\sigma^+,\nu}$ (fig. 3). Les courbes d'absorption optique des deux sous-niveaux ont sensiblement la même forme mais elles sont décalées de 130 cm^{-1} environ. Ce décalage révèle une structure de l'état excité des centres F dans KBr qui n'est pas résolue par absorption optique ordinaire, vue la grande largeur de la bande F. Il est impossible de dire, pour le moment, si cette structure est de même nature que celle observée par Rabin et Schulman [12] sur les centres F dans CsCl et CsBr.

(2) Les tensions internes ont été observées entre polaris croisés et sont probablement principalement dues à la trempe effectuée au cours de la préparation. Du fait de ces tensions, nous avons sans doute sous-estimé $\Delta I/I$ et le décalage entre les deux courbes de la figure 3 par un facteur compris entre 1,04 et 1,36.

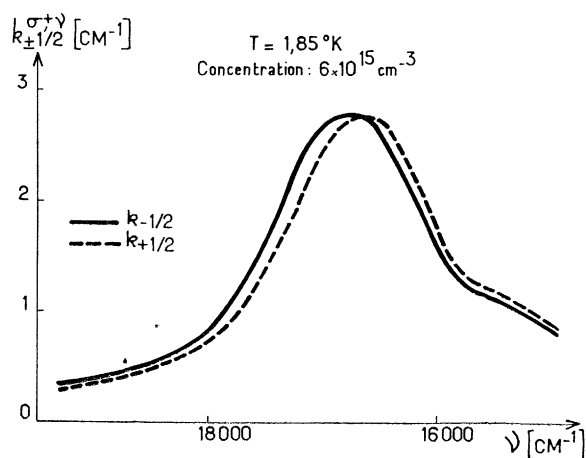


FIG. 3.

Nous pouvons donner une explication phénoménologique de la structure observée en utilisant, pour le centre F , le modèle approximatif classique d'un atome alcalin. La bande F serait alors associée aux 2 raies de résonance D_1 et D_2 ($^2S_{1/2} \rightarrow ^2P_{1/2}$, $^2P_{3/2}$). On sait que l'absorption σ_+ du niveau $|1/2\rangle$ est constituée d'une raie unique, d'intensité 3 à l'emplacement de D_2 tandis que l'absorption σ_+ de $|-1/2\rangle$ consiste en 2 raies d'intensité 2 et 1 aux emplacements de D_1 et D_2 respectivement. Si ces raies s'élargissent beaucoup, on observera une raie unique d'intensité 3 aux $2/3$ de l'intervalle entre D_2 et D_1 . Or, précisément, nous observons pour les centres F de KBr des absorptions σ_+ d'intensités égales à partir de $|1/2\rangle$ et $|-1/2\rangle$, l'absorption de $|-1/2\rangle$ étant décalée de 130 cm^{-1} vers le bleu. Si nous admettons la validité du modèle précédent D_1 serait donc décalé de $3/2 \times 130 \simeq 200 \text{ cm}^{-1}$ vers le bleu par rapport à D_2 . C'est-à-dire que la structure fine du niveau excité P des centres F serait inversée. ($P_{3/2}$ au-dessous de $P_{1/2}$. Constante de couplage spin-orbite $\lambda = -200 \times 2/3 = -130 \text{ cm}^{-1}$).

Une rotation Faraday paramagnétique est liée à la différence entre $k_{1/2}^{\sigma_+ \nu}$ et $k_{-1/2}^{\sigma_+ \nu}$. Elle est qualitativement calculable à partir des courbes de la figure 3. L'effet doit être positif sur les ailes de la bande F et négatif au sommet. L'expérience a entièrement confirmé cette prévision⁽³⁾: En lumière σ_+ c'est donc bien l'absorption du niveau $|-1/2\rangle$ qui est décalée vers le bleu et la structure spin-orbite du niveau excité est bien inversée dans la mesure où le modèle assimilant la bande F aux raies D_1 et D_2 est valable.

En fait, les modèles classiques des centres F

⁽³⁾ La constante de Verdet paramagnétique au sommet de la bande est de $-0,1$ minute/cm/gauss à $1,85 \text{ °K}$ pour l'échantillon C. On peut utiliser cet effet Faraday paramagnétique pour mesurer les populations de l'état fondamental [13] et réaliser des expériences comparables à celles décrites au paragraphe IV ci-dessous.

semblent conduire à une interaction spin-orbite beaucoup plus faible et positive [14]. Il nous semble qu'avant de tenter une interprétation théorique des résultats précédents, il sera sage de répéter l'expérience sur les centres F dans d'autres halogénures alcalins.

IV. Étude de quelques propriétés de l'état fondamental. — La méthode optique utilisée est particulièrement bien adaptée pour mesurer certaines propriétés de l'état fondamental :

- analyse de la raie de résonance électronique ;
- mesures des temps de relaxation spin-réseau pour des très faibles concentrations ;
- variation du temps de relaxation spin-réseau en fonction du champ ;
- étude de l'effet Back-Goudsmit.

Ces études ont été effectuées avec un faisceau lumineux de faible intensité afin de ne pas perturber les populations des sous-niveaux du fondamental. La longueur d'onde de la lumière était maintenue fixe $\nu = 17\,300 \text{ cm}^{-1}$.

Afin de vérifier que l'intensité de la lumière transmise donne une image exacte des populations des sous-niveaux fondamentaux, on a fait varier systématiquement le champ continu entre 760 Oe et $8\,810 \text{ Oe}$ et la température entre $1,85 \text{ °K}$ et $2,11 \text{ °K}$. Dans ce domaine, la différence des populations des sous-niveaux Zeeman est proportionnelle à H_0/T à mieux que 4% ce qui est supérieur à la précision des mesures. La proportionnalité de $\Delta I/I$ à H_0/T a été vérifiée ce qui justifie la méthode de mesure utilisée.

1) RÉSONANCE ÉLECTRONIQUE DU FONDAMENTAL.

— La résonance électronique du fondamental a été observée par voie optique. Si en présence de puissance hyperfréquence dans la cavité on passe rapidement à travers le champ magnétique de résonance, on observe l'inversion de populations par passage rapide. On peut aussi observer la saturation de la résonance. Lorsque, en l'absence de puissance hyperfréquence dans la cavité et après avoir polarisé le système de spins dans le champ de résonance, on inverse le sens du champ, on observe d'après l'équation (2) une variation relative de l'intensité lumineuse

$$\left(\frac{\Delta I}{I}\right)_1 = -2 \left(\frac{1}{2} - \omega_{1/2}\right) l(k_{1/2}^{\nu} - k_{-1/2}^{\nu})$$

puisque

$$\omega'_{1/2} = 1 - \omega_{1/2}.$$

Si au contraire, avec les mêmes conditions initiales, on sature la résonance, on doit observer

$$(\Delta I/I)_2 = -\left(\frac{1}{2} - \omega_{1/2}\right) l(k_{1/2}^{\nu} - k_{-1/2}^{\nu})$$

puisque alors

$$\omega'_{1/2} = \omega_{-1/2} = 0,5.$$

Pour obtenir effectivement dans ces conditions un $(\Delta I/I)_2$ égale à la moitié de $(\Delta I/I)_1$, il faut balayer le champ continu autour de sa valeur moyenne dans une plage d'environ 200 Oe. La raie de résonance des centres F est, en effet, inhomogène (élargissement hyperfin par les noyaux voisins) : Si on en sature une partie seulement, « le trou creusé » n'a pas diffusé au bout d'un temps comparable à T_1 .

2) TEMPS DE RELAXATION SPIN-RÉSEAU. — A l'opposé de ce qu'ont observé Ohlsen et Holcomb [15], le retour vers l'équilibre de Boltzmann à partir d'une température de spin infinie ou même

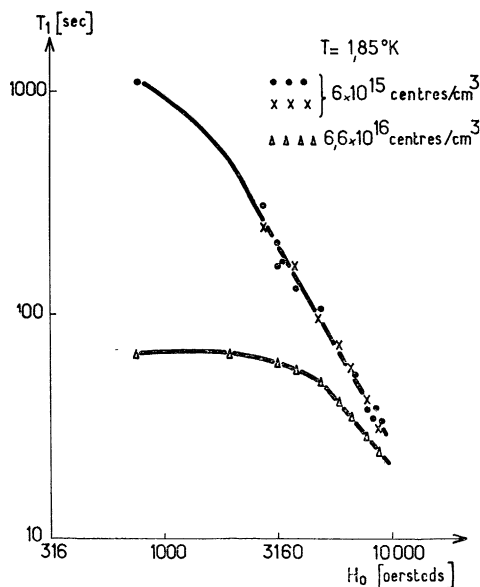


FIG. 4.

négative se fait toujours exactement suivant une exponentielle. La variation de T_1 en fonction du champ magnétique H_0 est donnée par la figure 4 pour les échantillons dilués A et B et l'échantillon plus concentré C. Pour les échantillons faiblement concentrés et pour H_0 compris entre 2 500 et 8 800 Oe., $T_1 \approx H_0^{-x}$ avec $x = 1,8 \pm 0,2$. Dans le domaine étroit de températures exploré la variation avec la température est en accord avec une loi en T^{-1} indiquant un processus direct. A 3000 Oe, $T_1 T = 440 \text{ s } ^\circ K$.

Pour l'échantillon C, 11 fois plus concentré, T_1 est plus court et varie peu avec le champ H_0 ; sa variation avec la température est approximativement en T^{-1} , ou, peut-être, plus lente. Ces lois de variation sont en accord avec celles observées dans KCl par Ohlsen et Holcomb. L'ordre de grandeur des temps de relaxation observés ainsi que leurs variations avec la température et le champ magnétique peuvent être expliqués en admettant que le processus de relaxation dominant est dû à la modulation par les vibrations du réseau du cou-

plage hyperfin entre l'électron des centres F et les noyaux de potassium et de brome voisins (4). Deigen et Zevin [16] ont calculé le temps de relaxation pour les centres F dans KCl suivant ce modèle. Ils trouvent effectivement qu'à basse température $1/T_1 \approx H_0^2 T$ et suivant la valeur adoptée pour la vitesse du son dans KCl , ils calculent à 3 000 Oe. $T_1 T$ de l'ordre de 480 à 5 000 s $^\circ K$. Ce calcul est en bon accord avec les résultats expérimentaux connus pour les centres F dans KCl . A 3 000 Oe. MacAvoy et al. [7] trouvent

$$T_1 T \approx 2,7 \times 10^3 \text{ s } ^\circ K.$$

Dans le cas de KBr les interactions avec les noyaux voisins sont plus importantes et on doit bien s'attendre à des temps de relaxation plus courts.

3) EFFET BACK-GOUDSMIT. — Si on polarise le système de spins à 8 000 Oe, et qu'on ramène rapidement le champ à 1 000 Oe, on n'observe pas de changement brusque de l'intensité lumineuse transmise. Le signal varie avec une constante de temps de plusieurs minutes (T_1 à 1 000 Oe). Si au contraire on ramène brusquement le champ à une valeur inférieure à 100 Oe, on observe une variation brutale de la lumière transmise. Cette variation est d'autant plus grande que la valeur atteinte pour H_0 est plus voisine de zéro. Elle est partiellement réversible. Elle pourrait être due à un changement adiabatique de la polarisation électronique qui, par effet Back-Goudsmit, serait transmise partiellement, en champ faible, aux spins nucléaires voisins. Si cette hypothèse est exacte, la quasi réversibilité de l'effet montre que la polarisation nucléaire ainsi créée ne diffuse pas trop rapidement dans l'échantillon mais reste sur les noyaux entourant le centre F .

V. Pompagement optique. — L'effet de la lumière sur les centres F se traduit de deux façons : d'une part à l'équilibre les populations respectives des deux sous-niveaux ne sont plus celles correspondant à l'équilibre de Boltzmann, d'autre part, l'état d'équilibre n'est pas atteint avec le temps de relaxation thermique T_1 mais avec une constante de temps τ plus courte. Ces 2 effets ont été observés. Pour déterminer les populations des sous-niveaux dans un état donné du système, on mesure le $\Delta I/I$ quand à partir de cet état on réalise une température de spin infinie (en ramenant rapidement le champ à la valeur convenable et en saturant la résonance) : On évite ainsi les erreurs éventuelles dues à des dérives de l'intensité lumineuse sur de longs intervalles de temps.

1) CALCUL DU CYCLE DE POMPAGE OPTIQUE. — Si on admet que pour un centre F dans l'état

(4) Nous remercions le Pr A. Abragam qui nous a suggéré cette explication.

excité les probabilités de retour dans les deux sous-niveaux Zeeman du fondamental sont égales (voir cycle de pompage, *fig. 5*), la variation de populations $\varpi_{1/2}$ du niveau $|+1/2\rangle$ obéit à l'équation

$$\frac{d\varpi_{1/2}}{dt} = -\alpha k_{1/2}^{p\nu} \varpi_{1/2} + \frac{1}{2} \alpha (k_{1/2}^{p\nu} \varpi_{1/2} + k_{-1/2}^{p\nu} \varpi_{-1/2}) + \frac{1}{T_1} (\pi_{1/2} - \varpi_{1/2}). \quad (3)$$

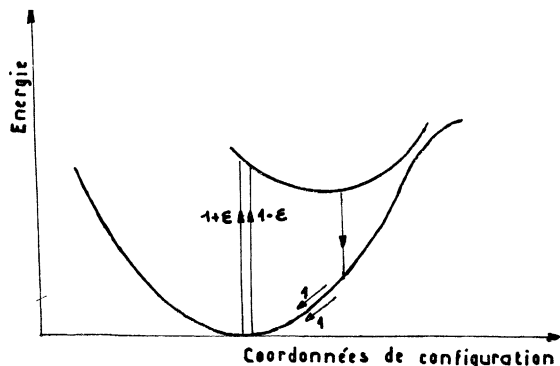


FIG. 5. — Cycle de pompage dans le diagramme de « coordonnées de configuration ».

Le premier terme du deuxième membre rend compte de l'absorption lumineuse, le deuxième de retour des centres à l'état fondamental après le cycle de pompage, le troisième de la relaxation thermique. $\pi_{1/2}$ est la population relative du niveau $|1/2\rangle$ à l'équilibre de Boltzmann :

$$\pi_{1/2} \simeq \frac{1}{2} - \frac{g \beta H_0}{4kT}.$$

Le coefficient α est de la forme

$$[T_p (k_{1/2}^{p\nu} + k_{-1/2}^{p\nu})]^{-1}$$

où T_p est un « temps entre absorption de photons », inversement proportionnel à l'intensité lumineuse incidente I_0 . Si nous posons

$$p_{1/2} = k_{-1/2}^{p\nu} (k_{1/2}^{p\nu} + k_{-1/2}^{p\nu})^{-1},$$

l'équation (3) peut s'écrire :

$$\frac{d\varpi_{1/2}}{dt} = \frac{1}{2T_p} (p_{1/2} - \varpi_{1/2}) + \frac{1}{T_1} (\pi_{1/2} - \varpi_{1/2}).$$

Donc, la population relative du niveau $|1/2\rangle$ tend vers la limite :

$$\varpi_{1/2} \rightarrow \frac{T_1 p_{1/2} + 2T_p \pi_{1/2}}{T_1 + 2T_p} \quad (4)$$

avec la constante de temps τ telle que :

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{T_1} + \frac{1}{2T_p}. \quad (5)$$

L'inversion de populations est réalisée lorsque $\pi_{1/2} > 0,5$, donc d'après l'égalité (4) lorsque

$$T_1 \frac{k_{-1/2}^{p\nu} - k_{1/2}^{p\nu}}{k_{-1/2}^{p\nu} + k_{1/2}^{p\nu}} > T_p \frac{g \beta H_0}{kT}. \quad (6)$$

L'inégalité (6) nécessite évidemment, comme condition préalable $k_{-1/2}^{p\nu} > k_{1/2}^{p\nu}$ ce qui, d'après la figure 3, est réalisé si on pompe en σ_+ avec $\nu > 16\,700 \text{ cm}^{-1}$ ou si on pompe en σ_- avec $\nu < 16\,700 \text{ cm}^{-1}$.

2) OBSERVATION ET ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DU POMPAGE OPTIQUE. — L'intensité lumineuse est multipliée par 300 environ par rapport aux expériences précédentes. La puissance lumineuse reçue par $0,12 \text{ cm}^2$ d'échantillon est alors estimé à quelques microwatts. La lumière est polarisée en σ_+ et son nombre d'onde est $17\,450 \text{ cm}^{-1}$, sa largeur spectrale est de l'ordre de 200 cm^{-1} . Nous opérons sur l'échantillon dilué B. Dans ces conditions, le rapport observé des populations des niveaux $|1/2\rangle$ et $|-1/2\rangle$ dans un champ de 760 Oe est de $1,08$, alors qu'à l'équilibre de Boltzmann, il serait de $0,95$.

La constante de temps τ a été étudiée en fonction de l'intensité lumineuse I_0 reçue par l'échantillon à champ magnétique fixe ($H_0 = 760 \text{ Oe}$). Comme on le voit sur la figure 6, $1/\tau$ est fonction

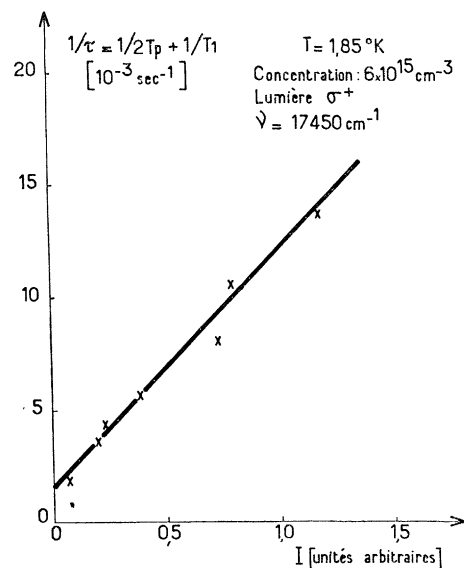


FIG. 6.

linéaire de I_0 ce qui est en accord avec l'équation (5). La pente de la droite obtenue permet de calculer T_p en fonction de I_0 .

L'intensité lumineuse I_0 nécessaire pour réaliser l'égalité des populations a été étudiée en fonction du champ magnétique continu H_0 (*fig. 7*). La courbe en trait plein a été calculée à partir de l'inégalité (6) dans laquelle les différents paramètres sont connus.

T_1 a été déterminé en fonction du champ (*fig. 4*).

$k_{1/2}^{\sigma_+, \nu}$ et $k_{-1/2}^{\sigma_+, \nu}$ sont connus (*fig. 3*).

T_p est déterminé en fonction de l'intensité lumineuse I_0 (*fig. 6*).

Les points représentent pour cinq valeurs de I_0 , le champ *expérimental* H_0 pour lequel les populations des niveaux $|1/2 \rangle$ et $|-1/2 \rangle$ sont rendues égales par l'effet combiné de la lumière et de la relaxation spin-réseau.

La courbe de la figure 7 sépare le plan H_0, I_0 en deux régions : Dans la région inférieure la température de spin à l'équilibre est positive, dans la région supérieure elle est négative. L'accord entre l'expérience et la courbe théorique est assez bon.

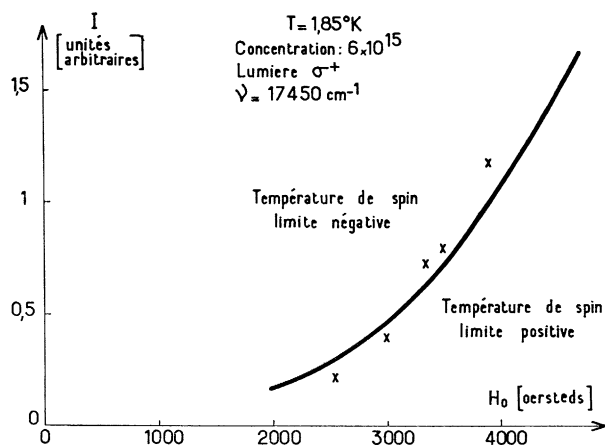


FIG. 7.

Le retour à l'état fondamental d'un centre F fait intervenir des transitions non radiatives (fig. 5), on aurait donc pu penser, qu'au cours de cette transition, les niveaux $|+1/2 \rangle$ et $|-1/2 \rangle$ ne se peuplent pas également, mais plutôt suivant une loi de Boltzmann. Les calculs faits dans cette dernière hypothèse montrent l'existence d'un champ

critique H_c au-dessus duquel l'inversion de populations ne pourrait être réalisée quelle que soit l'intensité lumineuse I .

D'après les résultats de la figure 3, H_c serait égal à 2 800 Oe pour KBr à la longueur d'onde de pompage la plus favorable et à 1,85 °K. L'obtention de températures de spin négatives jusqu'à des champs de 3 900 Oe montre qu'il n'en est rien. Notre première hypothèse (probabilité de retour égales) est beaucoup plus proche de la réalité, comme le montre la figure 7. Des expériences plus précises et employant des intensités lumineuses plus élevées seraient nécessaires pour savoir si cette première hypothèse est entièrement correcte ou seulement approchée.

VI. Conclusion. — Les résultats obtenus sur les temps de relaxation et la structure de l'état excité montrent l'utilité des méthodes de détection optique en physique du solide. La nature de la structure de l'état excité n'est pas encore expliquée. En vue d'élucider cette question, il semble intéressant de reprendre la même expérience dans d'autres halogénures alcalins, notamment ceux dont l'absorption en lumière naturelle présente déjà une structure partiellement résolue.

En vue de réaliser un maser pompé optiquement suivant ce processus, il serait intéressant d'étudier les défauts de réseau dans des cristaux ioniques tels que MgO ou CaO , dans lesquels les raies de résonance électronique ne présentent pas d'élargissement inhomogène par les spins nucléaires. En raison des grandes forces d'oscillateur et des temps de relaxation longs, les défauts de réseau semblent particulièrement adaptés à l'étude détaillée des cycles de pompage optique dans les solides.

Manuscrit reçu le 19 juillet 1963.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] DEVOR (D. P.), D'HAENENS (I. J.) et ASAWA (C. K.), *Phys. Rev. Letters*, 1962, **8**, 432.
- [2] ZVEREV (G. M.), PROKHOROV (A. M.) et SHEVTCHENKO (A. K.), *Zhur. Ekspte i Teoret Fiz.*, 1963, **44**, 1415.
- [3] SERIES (G.) et TAYLOR (M. J.), *J. Physique Rad.*, 1958, **19**, 901.
- [4] BROSEL (J.), *Quantum Electronics*, Columbia Un. Press, 1960, p. 81.
- [5] Laboratoire de Physique Générale de Grenoble et S. A. C. M., *Compte rendu des études*, 14 mars 1963.
- [6] LAMBE (J.) et BAKER (J.), *Quantum Electronics*, Columbia Un. Press, 1960, p. 93.
- [7] MACAVOY (B.), FELDMAN (D.), CASTLE (J., Jr.) et WARREN (R.), *Phys. Rev. Letters*, 1961, **6**, 618.
- [8] WIEDER (I.) et HYDE (J.), *Bull. Amer. Phys. Soc.*, 1960, **5**, 497.
- [9] SWANK (R. K.) et BROWN (F. C.), *Phys. Rev.*, 1963, **130**, 34.
- [10] BROSEL (J.) et MARGERIE (J.), *Paramagnetic Resonance*, Academic Press, 1963, p. 535.
- [11] Voir, par exemple : SCHULMAN (J. H.) et COMPTON (D. W.), *Color centers in solids*, Pergamon Press, 1962.
- [12] RABIN (H.) et SCHULMAN (J.), *Phys. Rev.*, 1962, **125**, 1584.
- [13] KASTLER (A.), *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 953.
- [14] SUFFCZYNSKI (M.), *J. Chem. Physics*, 1963, **38**, 1558.
- [15] OHLSEN (W. D.) et HOLCOMB (D. F.), *Phys. Rev.*, 1962, **126**, 1953.
- [16] DEIGEN (M. F.) et ZEVIN (V. Y.), *J. E. T. P.*, 1961, **12**, 785.