

Le cours de cette année a été consacré à une étude comparative de divers traitements théoriques du processus d'émission spontanée. Il s'agissait de présenter, à propos de cet exemple simple, diverses descriptions possibles du comportement irréversible d'un petit système (ici l'atome) couplé à un grand réservoir (ici le champ de rayonnement).

- 1) On a commencé par considérer le modèle le plus simple possible où le problème de l'émission spontanée est ramené à celui de l'évolution d'un état discret unique couplé à un continuum unique. L'intérêt d'un tel modèle est qu'il est suffisamment simple pour qu'on puisse mener les calculs jusqu'au bout. On peut alors avoir une idée précise des déviations par rapport au comportement exponentiel prévu par les méthodes approchées et comprendre le rôle des différents paramètres physiques (largeur du continuum, intensité du couplage...).

Après un bref rappel des méthodes perturbatives et du traitement de Weisskopf-Wigner qui permet d'introduire simplement les notions de durée de vie, "Lamb-shift"..., on montre tout l'intérêt qu'il y a à passer de l'espace des temps à l'espace des fréquences. L'équation integrodifférentielle à laquelle conduit l'équation de Schrödinger se transforme en effet en une équation algébrique, beaucoup plus commode à étudier. Une méthode simple de résolution de cette équation, basée sur une construction graphique, est alors présentée. Elle permet de suivre le comportement du système lorsque, partant d'un continuum très large et d'un couplage très faible, on diminue progressivement la largeur du continuum en augmentant l'intensité du couplage. On retrouve bien sur au début les résultats de la théorie de Weisskopf-Wigner, mais avec des corrections au comportement exponentiel aux temps courts (la probabilité de transition varie en t^2 et non en t) et surtout aux temps longs (la décroissance est en $1/t^n$ et non exponentielle). Puis, lorsque la largeur du continuum décroît et que l'intensité du couplage croît, on voit apparaître des oscillations amorties dont l'amplitude croît progressivement pour devenir prépondérante à la limite d'un couplage très intense avec un continuum très étroit. On retrouve ainsi, dans cette autre limite, le résultat bien connu de la précession de Rabi entre 2 états discrets couplés par une perturbation.

Le traitement présenté dans cette dernière partie permet ainsi de comprendre comment on passe continûment de la précession de Rabi à la décroissance exponentielle de Weisskopf-Wigner.

2) Le problème de la préparation de l'état initial, à savoir l'état propre discret de H_0 , est ensuite abordé dans le cadre de l'étude de la diffusion résonnante. L'une des façons les plus simples de préparer un état atomique excité consiste en effet à envoyer sur un atome dans l'état fondamental une impulsion lumineuse résonnante aussi brève que possible.

L'amplitude de diffusion est calculée (sans approximations) dans le cadre du modèle simple précédent et l'existence d'une résonance étroite dans la section efficace de diffusion est mise en évidence. La connaissance de l'amplitude de diffusion pour chaque valeur de l'énergie permet également d'étudier la diffusion d'un paquet d'ondes au voisinage immédiat de la résonance. Les résultats obtenus sont appliqués à l'interprétation de diverses expériences récentes (diffusion légèrement hors-résonance, battements quantiques apparaissant lorsque l'état excité a une structure...). On montre également que, même avec les impulsions lumineuses les plus brèves que l'on sache réaliser actuellement, l'observation de décroissances non-exponentielles en physique atomique reste un problème très difficile.

3) Afin d'améliorer le modèle simple précédent et de pouvoir tenir compte éventuellement de l'existence de plusieurs niveaux discrets et de plusieurs continus, on introduit alors la méthode des opérateurs de projections qui permet de concentrer le calcul sur les éléments de matrice intéressants de l'opérateur d'évolution.

Diverses expressions algébriques sont établies et appliquées à quelques problèmes physiques : établissement de l'hamiltonien effectif (non nécessairement hermitique) décrivant l'évolution de plusieurs états discrets, proches les uns des autres et couplés à un même continuum, effet des dégénérescences Zeeman sur l'émission spontanée. Le problème des cascades radiatives, qui fait intervenir plusieurs continus couplés les uns aux autres, reçoit une attention particulière. On montre comment l'interférence entre des cascades différant par l'ordre des photons émis peut modifier la répartition spectrale du rayonnement émis. Le cas de l'oscillateur harmonique, où ces interférences jouent un rôle particulièrement important par suite de l'équidistance entre les niveaux d'énergie, est étudié en détail.

4) Lorsqu'on veut étudier l'émission spontanée d'un système de plusieurs atomes, ou, plus généralement, lorsqu'on s'intéresse à l'évolution d'un système S, plus compliqué qu'un seul atome, couplé à un grand réservoir, les méthodes précédentes conduisent à des calculs trop compliqués parce que donnant trop d'informations (états de S et de R, corrélations entre S et R...). Il peut être plus avantageux de concentrer les efforts sur le calcul de l'évolution de la matrice densité réduite décrivant le comportement du système S. Une telle équation d'évolution porte le nom "d'équation pilote" et c'est à l'étude détaillée d'une telle équation qu'est consacrée la dernière partie du cours.

On commence par introduire les propriétés essentielles de l'espace de Liouville d'un système quantique (espace des opérateurs de ce système). L'équation d'évolution de la matrice densité du système global S+R a, dans cet espace, une forme très simple, de même que l'opération de trace partielle par rapport à R, à laquelle est associé un opérateur de projection. On montre que les résultats obtenus plus haut concernant le passage de l'espace des temps à l'espace des fréquences et les opérateurs de projection peuvent être aisément généralisés à l'espace de Liouville et conduisent à des équations exactes compactes décrivant l'évolution au cours du temps de la matrice densité réduite de S. L'intérêt de ces expressions est qu'elles se prêtent particulièrement bien à des approximations dont les conditions de validité apparaissent clairement : développement en puissances du couplage entre S et R qui converge si le temps de corrélation τ_c de l'interaction entre A et R est suffisamment court ; approximation de mémoire courte (τ_c court devant le temps de relaxation T) qui permet de remplacer l'équation integrodifférentielle à laquelle se réduit l'équation pilote par une équation différentielle.

Afin d'analyser le contenu physique de l'équation pilote, l'équation d'évolution de chaque élément de la matrice densité de S est écrite explicitement dans un cas simple (spectre discret non-dégénéré pour S). Des méthodes diagrammatiques sont introduites pour calculer rapidement les différents coefficients de l'équation pilote. Les taux de transfert entre les différents niveaux de S sont déterminés et interprétés physiquement. On montre comment S atteint l'équilibre thermodynamique en interagissant avec un réservoir R lui-même en équilibre. Le déplacement et l'élargissement des diverses transitions de S sous l'effet du couplage avec R sont également analysés.

Une étude détaillée de l'effet des corrélations apparaissant entre S et R est finalement présentée. On montre que ces corrélations jouent un rôle essentiel pour faire évoluer S mais qu'elles ne durent qu'un temps très court de l'ordre de τ_c . Dans le même ordre d'idées, une formule compacte est établie pour les fonctions de corrélation de S qui permet de comprendre clairement les approximations utilisées dans l'établissement du "théorème de régression quantique".

- 5) Le formalisme de l'équation pilote, ainsi développé, est alors appliqué à un premier problème concret : celui de l'oscillateur harmonique amorti. S est un oscillateur harmonique, R un grand ensemble d'oscillateurs, de toutes fréquences, en équilibre thermodynamique.

L'équation pilote de S est établie et permet d'étudier en détail l'amortissement de l'énergie et de l'amplitude d'oscillation de S. La projection de l'équation pilote sur la base des états cohérents de l'oscillateur harmonique, introduits et étudiés en détail dans le cours de l'année antérieure, permet de faire le lien avec la mécanique statistique classique. L'opérateur densité est représenté dans cette base par une "densité de quasi-probabilité" $P(\alpha)$ qui obéit à une équation de Fokker-Planck, décrivant la manière dont $P(\alpha)$ évolue et diffuse dans le plan complexe sous l'effet du couplage avec R.

- 6) Une deuxième application du formalisme de l'équation pilote à l'étude de l'émission spontanée d'un grand moment cinétique est alors présentée. La motivation d'une telle étude est que le problème de l'émission spontanée de rayonnement par un ensemble de $2N$ atomes à 2 niveaux initialement tous excités dans le niveau supérieur (superradiance) peut être ramené, dans certaines conditions, à celui de l'émission spontanée de rayonnement par un moment cinétique $J = N$, préparé initialement dans l'état $|J, J\rangle$. Après une discussion qualitative du lien entre le problème étudié et celui de la superradiance, l'équation d'évolution de $\langle J_z \rangle$ (énergie moyenne du moment cinétique) est établie et résolue de manière approchée. On montre que l'énergie émise par unité de temps (proportionnelle à $-\frac{d}{dt} \langle J_z \rangle$ par suite de la conservation de l'énergie) a la forme d'une impulsion. La dépendance en J de la hauteur, de l'abscisse et de la largeur de cette impulsion est établie, ce qui permet de comprendre la dépendance en N de l'énergie, du délai et de la largeur d'une impulsion superradiante.

Thème général du cours 1976-77

Interactions résonnantes ou quasi-résonnantes d'un atome ou d'une molécule avec une ou plusieurs ondes électromagnétiques intenses et monochromatiques.

Motivations d'un tel choix

① Introduire et discuter à propos de ce problème particulier un certain nombre de problèmes plus généraux

a) Problème d'un petit système (ici l'atome ou la molécule) couplé à un grand système (ici l'onde électromagnétique intense incidente) qui, à la différence des "thermostats" a mémoire très courte étudiés l'an dernier, a une mémoire très longue (l'onde, quasimonochromatique, est supposé avoir un temps de cohérence très long).

Difficulté qu'il y a à séparer simplement l'évolution du petit système de celle du gros par suite des corrélations qui apparaissent entre eux et de la longueur du temps de mémoire.

Intérêt qu'il y a à considérer le petit système et le gros en interaction comme formant un tout (image de l'atome habillé par des photons). Étude de l'évolution d'un tel système global (diagonalisation de l'hamiltonien global indépendant du temps), ce qui permet ensuite de décrire simplement l'évolution du petit système.

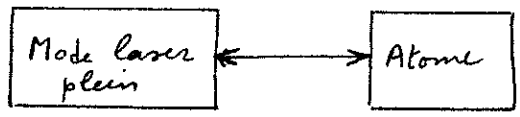


Fig 1

b) Lien avec la théorie des perturbations dépendant du temps dans le cas d'une perturbation sinusoïdale

Interprétation corpusculaire des diverses résonances.
Reinterprétation quantique de certaines méthodes de résolution de ce problème (méthode de Floquet-Shorley, états quasi-stationnaires, quasi-énergies...)

Traitement plus commode des processus d'ordre supérieur (déplacements radiatifs, processus multiphotoniques...)

c) Problème du bruit

Le système introduit sur la figure 1 (atome habillé) n'est en réalité pas isolé du monde extérieur

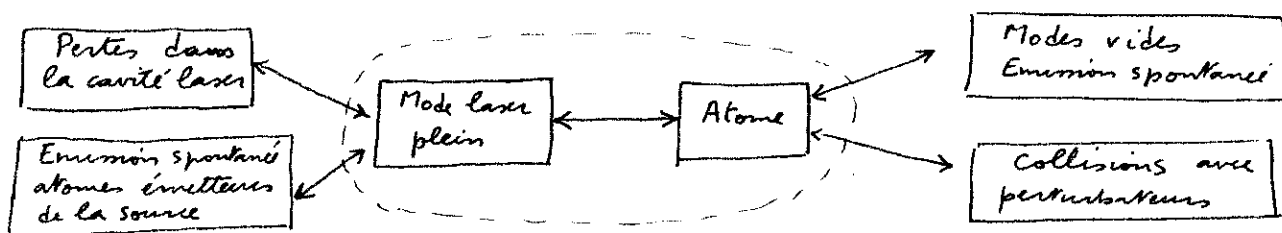


Fig. 2

La plupart des couplages supplémentaires représentés sur la figure 2 ont une mémoire très courte, de sorte que les traitements par équations pilote discutés l'an dernier leur sont applicables.

Une autre méthode qui n'a pu, par faute de temps, être étudiée l'an dernier, sera présentée : équations de Heisenberg et forces de Langevin.

Intérêt essentiel : images physiques simples, calcul simple des fonctions de corrélation

d) Problème des signaux de détection optique

Que mesure-t-on exactement avec un photomultiplicateur, un appareil interférentiel (comme un Fabry-Pérot), un corrélateur d'intensité ... ?

② Présenter un traitement synthétique et quantitatif des processus d'absorption et d'émission induite de photons par un système atomique.

- Traitement s'appliquant aussi bien à la spectroscopie des radiofréquences qu'à la spectroscopie optique.
- Perturbations liées aux hautes intensités de l'onde incidente
Déplacement et élargissement des résonances
Importance pour tirer des résultats expérimentaux les informations atomiques ou moléculaires précises.
- Rôle de l'émission spontanée.
Négligeable dans le domaine RF, importante dans le domaine optique.
Nécessité d'un traitement quantitatif (allant plus loin que la règle d'or de Fermi)
[les effets radiatifs de QED : $g-2$, Lamb-shift ... ne seront pas abordés cette année]

- Effets de saturation.

Etude des phénomènes nouveaux apparaissant lorsqu'on sature une transition atomique.

Saturation de l'absorption, effet Stark dynamique, fluorescence en champs intenses

- L'effet Doppler.

Introduction simple de l'effet Doppler dans le formalisme de l'atome habillé

Etude de diverses méthodes permettant de supprimer l'effet Doppler dans le domaine optique : absorption saturée, transitions multiphotoniques ...

- Aperçu sur les collisions en champs résonnants intenses.

Problèmes non abordés

- Photoionisation et ionisation multiphotonique

On se limitera à des transitions entre états discrets

- Description de la source lumineuse

On négligera la réaction de l'atome sur la source. On n'entrera pas dans le détail du fonctionnement de la source (couplages de la partie gauche de la figure 2) et on la considèrera plutôt comme délivrant un champ dans un état quasi-classique (source RF ou laser très au dessus du seuil).

Point de vue du spectroscopiste plutôt que celui du théoricien du laser.

- On se limitera à des jets atomiques ou à des vapeurs très diluées de manière à pouvoir négliger les effets coopératifs (superradiance ...)

Systeme à 2 niveaux interagissant avec

II-1

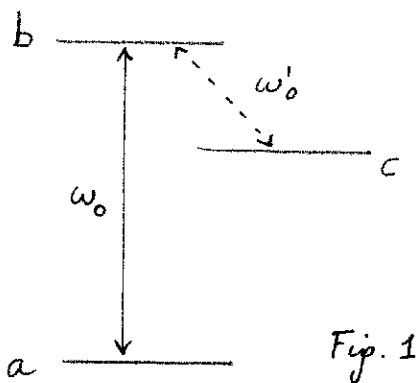
une onde monochromatique résonnante ou quasi-résonnante

But de ce chapitre

- Présenter un traitement entièrement quantique de l'interaction entre un système à 2 niveaux et un mode plein du champ e.m., les couplages dissipatifs, avec le milieu environnant (modes vides, collisions ...) étant pour le moment négligés.
"Atome habillé non couplé au milieu extérieur"
- Introduire les paramètres physiques fondamentaux et discuter les approximations.
- Introduire diverses représentations possibles des diagrammes d'énergie de l'atome habillé qui seront utiles pour les discussions physiques ultérieures. Montrer en particulier comment on peut introduire simplement l'effet Doppler sur ces diagrammes.

① Le modèle à 2 niveaux

La fréquence ω de l'onde e.m. est supposée suffisamment proche de la fréquence ω_0 d'une transition atomique a b (excitation résonnante ou quasi-résonnante) pour que l'on puisse "oublier" tous les autres niveaux atomiques. Les conditions de validité d'une telle approximation seront précisées plus loin (cf § 7).



Le fait de se concentrer sur la transition ba ne nous empêchera pas ultérieurement de considérer des processus d'émission spontanée de b ou a vers d'autres niveaux inférieurs, ou des interactions avec d'autres ondes beaucoup moins intenses, "sondant" d'autres transitions atomiques (par exemple bc) partageant un niveau commun avec la transition saturée ab.

② Représentation du spin fictif. Fréquence de Rabi

a) Correspondance entre observables atomiques et observables du spin fictif

- A tout système à 2 niveaux a, b (que ce soit un spin ou non), on peut associer un spin fictif $1/2$ \vec{S} .

$$|b\rangle \rightarrow |+\rangle \quad |a\rangle \rightarrow |-\rangle \quad (\text{II-1})$$

- Lorsque la transition ab est dipolaire électrique, l'opérateur dipole électrique D n'a, pour des raisons de parité, qu'un élément non diagonal $\langle a|D|b\rangle = \langle b|D|a\rangle^*$, que l'on peut toujours supposer réel (par un choix convenable des phases relatives de $|a\rangle$ et $|b\rangle$)

$$\langle a | D | b \rangle = \langle b | D | a \rangle = d, \text{ réel} \quad (\text{II-2}) \quad \boxed{\text{II-2}}$$

A l'observable $D/2d$, représentée dans la base $\{|b\rangle, |a\rangle\}$ par la matrice $\begin{pmatrix} 0 & 1/2 \\ 1/2 & 0 \end{pmatrix}$, est donc associée l'observable S_x du spin fictif (on prend $\hbar=1$)

$$D/2d \rightarrow S_x \quad (\text{II-3})$$

- Il sera utile d'introduire les observables D_+ , D_- auxquelles correspondent $S_+ = S_x + iS_y$, $S_- = S_x - iS_y$

$$D_+ = d |b\rangle \langle a| \quad D_- = d |a\rangle \langle b| \quad (\text{II-4})$$

$$\frac{1}{d} D_{\pm} \rightarrow S_{\pm} \quad (\text{II-5})$$

- Hamiltonien atomique H_A
En prenant l'origine des énergies au milieu de a et b , les énergies de b et a sont $+\omega_0/2$ et $-\omega_0/2$, de sorte que

$$H_A = \omega_0 \begin{pmatrix} 1/2 & 0 \\ 0 & -1/2 \end{pmatrix} \rightarrow \omega_0 S_z \quad (\text{II-6})$$

Donc à H_A correspond la précession de Larmor du spin fictif autour d'un champ \vec{B}_0 , \parallel à Oz , et tel que $\omega_0 = -\gamma B_0$ (γ : rapport gyromagnétique du spin). ω_0 est la fréquence de Larmor associée à \vec{B}_0 .

b) Représentation géométrique du couplage du système à 2 niveaux avec une onde monochromatique, traitée classiquement.

- Hamiltonien de couplage avec l'onde classique, d'amplitude E_c :

$$V = -D E_c \cos(\omega t + \varphi) \quad (\text{II-7})$$

D'après (II-3), $V \rightarrow -2d E_c \cos(\omega t + \varphi) S_x \quad (\text{II-8})$

c-a-d encore en posant $\boxed{\omega_1 = -d E_c} \quad (\text{II-9})$

$$V \rightarrow 2\omega_1 \cos(\omega t + \varphi) S_x \quad (\text{II-10})$$

ω_1 est la fréquence de Rabi, caractérisant le couplage du système à 2 niveaux avec l'onde c.m. Nous la supposons > 0 .

- Approximation du champ tournant (r.w.2).

D'après (II-10), à V correspond l'interaction du spin fictif avec un champ magnétique oscillant $\vec{B}_1 \cos(\omega t + \varphi)$, \parallel à Ox , et tel que $2\omega_1 = -\gamma B_1$.

Ce champ $\vec{B}_1 \cos(\omega t + \varphi)$ peut être décomposé en 2 composantes circulaires droite et gauche, d'amplitude $B_1 = B_1/2$.

L'approximation du champ tournant revient à ne conserver que la composante tournant dans le "bon" sens (même sens que la précession de Larmor autour de \vec{B}_0). V devient alors

$$V = \frac{\omega_1}{2} \begin{pmatrix} 0 & e^{-i(\omega t + \varphi)} \\ e^{i(\omega t + \varphi)} & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{II-11})$$

- Référentiel tournant OXYZ.

OXYZ tourne autour de B_0 à la fréquence ω (dans le "bon" sens). A $t=0$, OX fait un angle φ avec l'axe Ox du trièdre fixe. Dans OXYZ, la "bonne" composante de \vec{B}_1 , $\cos(\omega t + \varphi)$ est fixe et alignée le long de OX.

Un calcul très connu montre que, dans OXYZ, l'évolution du spin fictif est régie par l'hamiltonien indépendant de t :

$$\frac{1}{2} \begin{pmatrix} \omega_0 - \omega & \omega_1 \\ \omega_1 & -\omega_0 + \omega \end{pmatrix} \quad (\text{II-12})$$

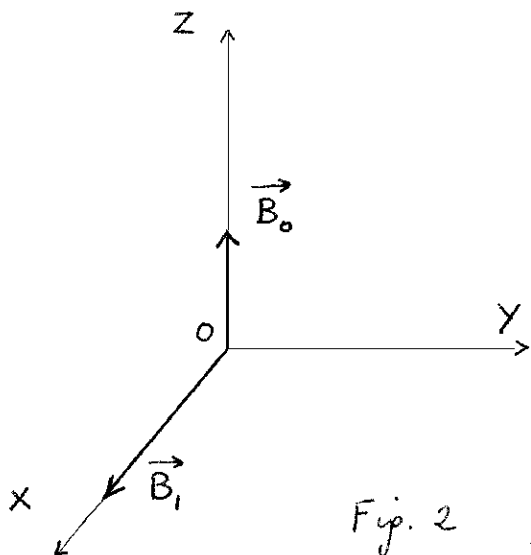


Fig. 2

Dans OXYZ, on est donc ramené au problème d'un spin $1/2$ \vec{S} interagissant avec 2 champs statiques

\vec{B}_0 \parallel à OZ et d'amplitude proportionnelle au désaccord $\omega_0 - \omega$

$$\omega_0 - \omega = -\gamma B_0$$

\vec{B}_1 \parallel à OX et d'amplitude proportionnelle à la fréquence de Rabi ω_1

$$\omega_1 = -\gamma B_1$$

A résonance ($\omega_0 = \omega$), le spin tourne uniquement autour de \vec{B}_1 à la fréquence ω_1 . Donc, l'atome oscille entre les 2 états $|b\rangle$ et $|a\rangle$ à la fréquence de Rabi.

③ Description quantique de l'onde électromagnétique.

L'atome étudié peut

- soit être à l'intérieur d'une cavité et interagir avec le champ électromagnétique excitant dans cette cavité.
- soit être dans l'espace libre et interagir avec une onde e.m. se propageant librement.

a) Champ e.m. associé à un mode plein d'une cavité.

- On suppose un seul mode de la cavité excité (onde monochromatique). a^+ et a : opérateurs de création et d'annihilation d'un photon de ce mode ; $|n\rangle$ état à n photons.

$$a|n\rangle = \sqrt{n} |n-1\rangle \quad a^+|n\rangle = \sqrt{n+1} |n+1\rangle \quad (\text{II-13})$$

- On suppose ce mode excité dans un état cohérent $|\alpha\rangle$ (voir cours 1974-75 pages III 1 à 7). Excellente description pour un champ RF ou un laser très au dessus du seuil.

$$|\alpha\rangle = e^{-|\alpha|^2/2} \sum_n \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle \quad (\text{II-14})$$

- Nombre moyen de photons \bar{n} .

$$\bar{n} = |\alpha|^2 \gg 1 \quad (\text{II-15})$$

\bar{n} a un sens bien défini dans une cavité et s'obtient en divisant l'énergie totale contenue dans la cavité par $\hbar\omega$.

- Dispersion du nombre de photons Δn . On trouve :

$$\begin{cases} \Delta n = \sqrt{\bar{n}} \gg 1 \\ \Delta n / \bar{n} = 1/\sqrt{\bar{n}} \ll 1 \end{cases} \quad (\text{II-16})$$

Δn grand en valeur absolue, petit en valeur relative

- Dispersion des valeurs possibles du champ électrique

Avec un choix convenable de l'origine des coordonnées, le champ électrique, au point où se trouve l'atome, s'écrit (en ne conservant que la contribution du mode plein) :

$$E = E_0 (a + a^\dagger) \quad (\text{II-17})$$

où E_0 est une constante représentant en quelque sorte le "champ électrique associé à un photon" ($E_0 \approx \sqrt{\hbar\omega/\epsilon_0 V}$ où ϵ_0 est la permittivité du vide, V le volume de la cavité)

E est donc l'équivalent de l'opérateur x pour l'oscillateur harmonique fictif associé au mode plein. La dispersion des valeurs de E est donc connue, à 1 facteur près, par la largeur en x de la fonction d'onde correspondante de l'oscillateur harmonique fictif. Or, un état cohérent est un état "minimal", obtenu par translation de l'état fondamental. La dispersion en E d'un état cohérent est donc la même que pour l'état fondamental, c-à-d $\Delta E = [\langle 0|E^2|0\rangle]^{1/2} = E_0$.

Remarques

(i) Il serait peu satisfaisant de tenir compte de la dispersion en E du mode plein et d'oublier les modes vides de la cavité, auxquels sont associés des fluctuations comparables de E .

(ii) Dépendance spatiale de l'amplitude du champ électrique : caractéristique du mode étudié et de la forme de la cavité.

Nous n'aborderons pas ce problème pour le moment. Important cependant en spectroscopie de très haute résolution (temps de traversée d'un faisceau laser gaussien par des atomes...)

b) Onde monochromatique se propageant librement dans l'espace

Afin de conserver des modes discrets, on enferme le champ dans une cavité fictive, de dimensions très grandes devant toutes les longueurs du pb.

On considère un mode unique de cette cavité, excité dans un état cohérent, tel que toutes les grandeurs physiques importantes au voisinage du point où se trouve l'atome (champ électrique, densité d'énergie...) aient la même valeur dans l'onde réelle et dans le mode de la cavité fictive considéré.

Le nombre moyen de photons \bar{n} dans ce mode n'a pas de sens physique, de même que le volume V de la cavité. A la fin des calculs, on doit pouvoir faire tendre \bar{n} et V vers l'infini ($\frac{\bar{n}}{V}$ restant constant) sans changer les résultats.

④ Hamiltoniens quantiques

Hamiltonien non perturbé

$$H_A = \omega_0 S_z \quad H_R = \omega a^\dagger a \quad (\text{II-18})$$

$$(H_A + H_R) |\pm, n\rangle = \left(\pm \frac{\omega_0}{2} + n\omega\right) |\pm, n\rangle \quad (\text{II-19})$$

$|\pm, n\rangle$: atome dans l'état $\frac{a}{2}$ en présence de n photons

Au voisinage de $\omega_0 = \omega$, les états $|-, n+1\rangle$ et $|+, n\rangle$ ont même énergie

Couplage

- Transitions dipolaires électriques .

$$V = -D \vec{E} \quad (\text{II-20})$$

D'après (II-4) ($D = D_+ + D_-$) et (II-17) :

$$V = -DE = -\epsilon_0 [D_+ + D_-] [a + a^\dagger] \quad (\text{II-21})$$

En termes de spin fictif (cf II-3 et II-5)

$$V = -\epsilon_0 d (S_+ + S_-) (a + a^\dagger) \quad (\text{II-22})$$

- Cas d'un vrai spin $1/2$ (transitions dipolaires magnétiques) .

$$V = -M B = -\gamma \beta_0 [\vec{E} \cdot \vec{J} a + \vec{E}^* \cdot \vec{J} a^\dagger] \quad (\text{II-23})$$

γ : rapport gyromagnétique du spin \vec{J}

β_0 : "champ magnétique" d'un photon.

\vec{E} : polarisation du champ magnétique.

On peut envisager diverses polarisations : π ($\vec{E} = \vec{e}_z$), σ ($\vec{E} = \vec{e}_x$)

$$\sigma_+ (\vec{E} = -\frac{1}{\sqrt{2}}(\vec{e}_x + i\vec{e}_y))$$

Approximation r.w.2 (pour les transitions dip. él.)

$$\text{On écrit } V = V_1 + V_2 \quad (\text{II-24})$$

$$\left\{ \begin{array}{l} V_1 = -\epsilon_0 d (S_+ a + S_- a^\dagger) \end{array} \right. \quad (\text{II-25})$$

$$\left\{ \begin{array}{l} V_2 = -\epsilon_0 d (S_+ a^\dagger + S_- a) \end{array} \right. \quad (\text{II-26})$$

V_1 couple entre eux les états $|+, n\rangle$ et $|-, n+1\rangle$ qui sont dégénérés au voisinage de $\omega_0 = \omega$.

V_2 couple entre eux les états $|+, n\rangle$ et $|-, n-1\rangle$ qui sont distants de $2\omega_0$ au voisinage de $\omega_0 = \omega$.

Au voisinage de $\omega_0 = \omega$, V_1 a donc un effet beaucoup plus important que V_2 . L'approximation r.w.2. revient à ne conserver que V_1 .

Dans le cadre de r.w.2., on est donc ramené à une infinité de problèmes à 2 niveaux puisque V_1 couple 2 par 2 les états propres de $H_A + H_R$. Le problème est donc entièrement soluble.

⑤ Premier type de diagramme d'énergie : ω fixe, ω_0 variable.

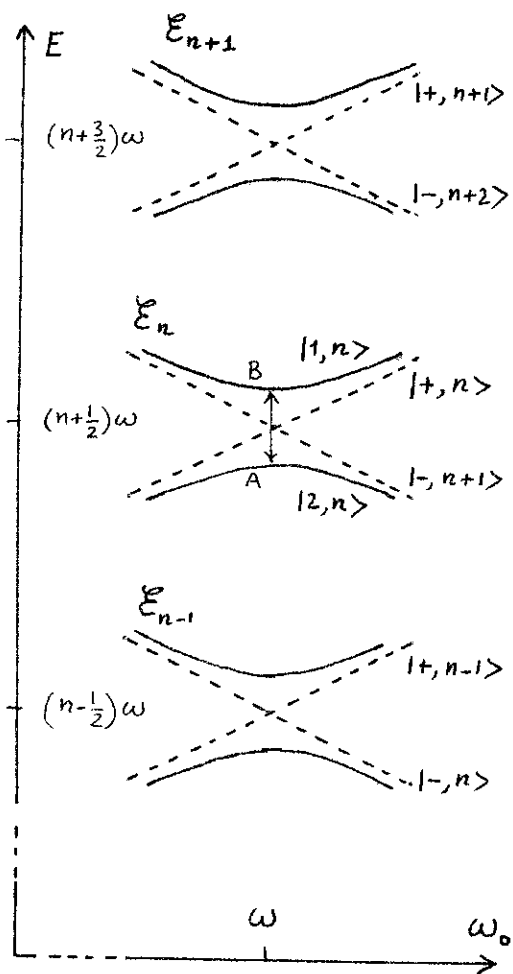


Fig. 3

Traits pointillés : Niveaux non-perturbés

- d'après (II-19) droites de pentes $\pm 1/2$
- Se groupent en multiplicités E_n , d'ordre 2, équidistantes
 $E_n : \{ |1+, n>, |1-, n+1> \}$
- Dans le cadre de r.w.a., V ne couple entre eux que les 2 niveaux d'une même multiplicité, se croisant en $\omega_0 = \omega$

Traits pleins : Niveaux perturbés $|1, n>$ et $|2, n>$

- Obtenus en diagonalisant V_1 à l'intérieur de chaque multiplicité E_n .
- Forment une hyperbole admettant les niveaux non-perturbés comme asymptotes ("anticroisement").
- Distance minimale entre les 2 branches de l'hyperbole : obtenue à résonance ($\omega_0 = \omega$) et égale à 2 fois l'élément de matrice (supposé réel > 0 par un choix convenable des phases relatives de $|1+>$ et $|1->$) de V entre $|1+, n>$ et $|1-, n+1>$

$$AB = 2 \langle +, n | V | -, n+1 \rangle \quad (\text{II-27})$$

D'après l'expression (II-25) de V_1

$$AB = -2 E_0 d \sqrt{n+1} \quad (\text{II-28})$$

⑥ La précession de Rabi retrouvée quantiquement

A résonance ($\omega_0 = \omega$), les états non-perturbés sont des combinaisons linéaires symétrique et antisymétrique des états perturbés (et réciproquement). Partons de l'état $|-, n+1>$ à $t=0$. Comme cet état n'est pas stationnaire, le système va évoluer et la probabilité de le trouver à un instant t ultérieur dans l'autre état non perturbé $|+, n>$ oscille à la fréquence de Bohr AB séparant les 2 états perturbés $|1, n>$ et $|2, n>$ en $\omega_0 = \omega$ (Fig. 3). Sous l'effet du couplage avec le rayonnement, l'atome oscille donc entre les 2 états $|a>$ et $|b>$ à la fréquence AB qui apparaît ainsi comme la fréquence de Rabi.

Ce résultat demeure valable si, au lieu de partir de l'état $|-, n+1>$, on part de l'état $|1-> |a> = \sum_{n+1} c_n |-, n+1>$, où les coefficients c_n du développement de l'état cohérent $|a>$ sont donnés en (II-14). On obtient alors une superposition d'oscillations à des fréquences légèrement différentes, correspondant à la dispersion des valeurs de $\sqrt{n+1}$ (voir II-28) lorsque n varie dans un intervalle de largeur $\Delta n \approx \sqrt{n}$ autour de la valeur moyenne \bar{n} du nombre de photons.

Cette dispersion des fréquences de Rabi correspond à la dispersion des valeurs du champ électrique E dans un état cohérent. Elle est en principe responsable d'un amortissement de la précession de Rabi. Mais nous avons vu plus haut (cf § 3) que la dispersion des valeurs de E dans l'état $|\alpha\rangle$ est très faible (de l'ordre de E_0 et indépendante de \bar{n})*, comparable aux fluctuations dues à chaque autre mode vide et négligées pour le moment, de sorte que nous n'en tiendrons pas compte. Dans la pratique, la précession de Rabi est amortie par d'autres processus, introduisant des constantes de temps beaucoup plus courtes.

Nous considérerons donc à partir de maintenant le diagramme de la fig. 3 comme périodique dans un intervalle de n de largeur \sqrt{n} autour de \bar{n} et remplacerons donc $\sqrt{n+1}$ par \sqrt{n} . Il y aura donc une seule fréquence de Rabi ω , donnée d'après (II-28) par :

$$\omega_1 = -2E_0 \text{ et } \sqrt{n} \quad (\text{II-29})$$

On en déduit aisément l'expression des états propres perturbés de E_n et des valeurs propres correspondantes. La matrice représentant l'hamiltonien $H_A + H_R + V$, dans la base $\{|+, n\rangle, |-, n+1\rangle\}$, est à une constante $(n + \frac{1}{2})\omega$ près (ordonnée de l'intersection des états non perturbés), identique à (II-12). de sorte que :

$$\begin{cases} E_{1n} = (n + \frac{1}{2})\omega + \frac{1}{2}\sqrt{\omega_1^2 + \delta^2} \\ E_{2n} = (n + \frac{1}{2})\omega - \frac{1}{2}\sqrt{\omega_1^2 + \delta^2} \end{cases} \quad (\text{II-30})$$

avec $\delta = \omega_0 - \omega$ (II-31)

Si l'on pose $\text{tg } 2\varphi = \frac{\omega_1}{\delta}$ ($\omega_1 > 0, 0 \leq 2\varphi \leq \pi$) (II-32)

$$\begin{cases} |1, n\rangle = \cos \varphi |+, n\rangle + \sin \varphi |-, n+1\rangle \\ |2, n\rangle = -\sin \varphi |+, n\rangle + \cos \varphi |-, n+1\rangle \end{cases} \quad (\text{II-33})$$

⑦ Retour sur l'approximation r.w.a. et l'approximation à 2 niveaux

L'approche quantique permet de dégager clairement les conditions de validité des 2 approximations précédentes (r.w.a. et modèle à 2 niveaux).

L'approximation r.w.a. est valable si l'effet de V_2 (cf II-26) est négligeable, c-à-d si l'élément de matrice de V_2 entre $|+, n\rangle$ et $|-, n+1\rangle$, de l'ordre de ω_1 , est petit devant la distance entre les 2 états conjugués, de l'ordre de ω_0 .

$$\omega_1 \ll \omega_0 \quad (\text{II-34})$$

Il n'y aurait pas grand sens à essayer de tenir compte (perturbativement) de V_2 , en continuant à "oublier" les autres niveaux.

(*) On vérifie aisément que la dispersion des valeurs de \sqrt{n} lorsque n varie autour de \bar{n} dans un intervalle de largeur $\sqrt{\bar{n}}$ est indépendante de \bar{n} :

$$\Delta \sqrt{n} = \left. \frac{d}{dn} \sqrt{n} \right|_{n=\bar{n}} \times \sqrt{\bar{n}} = \frac{1}{2\sqrt{\bar{n}}} \times \sqrt{\bar{n}} = \frac{1}{2}$$

Pour une étude quantitative de l'amortissement de la précession de Rabi due aux effets précédents voir l'article théorique de A. FAIST, E. GENEUX, P. MEYSTRE et A. QUATTROPANI : Helv. Phys. Acta. 45, 356 (1972).

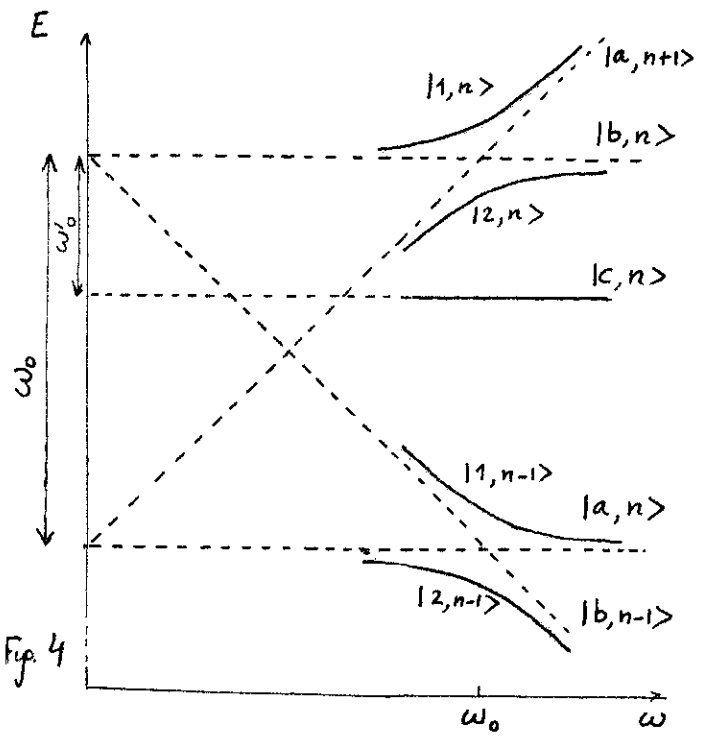
atomiques. On peut par exemple ignorer l'état c de la figure 1 si la fréquence de Rabi ω_1 , associée au couplage de l'onde laser $\omega \approx \omega_0$ avec la transition bc ($\omega_1 \sim \langle b, n | V | c, n+1 \rangle$), est négligeable devant la distance entre les 2 états couplés, de l'ordre de $|\omega_0 - \omega'_0|$ (ω'_0 fréquence de $b_2 c$)

$$\omega_1 \ll |\omega_0 - \omega'_0| \quad (II-35)$$

Dans toute la suite, nous supposons (II-34) et (II-35) réalisées.

Par contre, ω_1 pourra être éventuellement grand devant les Γ largesurs Γ de b et a dues aux processus dissipatifs (absorption et émission induite plus importante que l'émission spontanée, les taux de transfert par collisions ...)

⑧ Deuxième type de diagramme d'énergie : ω_0 fixe, ω variable



Traits pointillés : niveaux non perturbés

Seules, les différences d'énergie sont importantes de sorte que l'on peut toujours, pour chaque valeur de ω , prendre pour zéro d'énergie, l'énergie de $|a, n\rangle$. Les états $|a, n\rangle$ et $|b, n\rangle$ sont alors représentés par des droites horizontales, séparées par une distance ω_0 .

L'état $|a, n+1\rangle$ contient un photon de plus que $|a, n\rangle$ et est donc représenté par une droite de pente $+1$ couplant $|b, n\rangle$ en $\omega = \omega_0$. De même $|b, n-1\rangle$ est représenté par une droite de pente -1 couplant $|a, n\rangle$ en $\omega = \omega_0$.

On a aussi représenté $|c, n\rangle$ (voir état sur la figure 1) ; il lui correspond une droite horizontale, à une distance ω'_0 de $|b, n\rangle$.

Traits pleins : niveaux perturbés

Comme sur la figure 3, hyperboles admettant les niveaux non perturbés pour asymptotes

Au voisinage de $\omega = \omega_0$, la transition bc n'est pas excitée de façon résonnante. L'état $|c, n\rangle$ peut être considéré comme état propre de H

⑨ Diagrammes de fréquences. Introduction simple de l'effet Doppler.

Recherchons les fréquences apparaissant dans le mouvement du dipôle atomique D au voisinage de la fréquence ω'_0 de la transition sonde bc . Il faut pour cela trouver les fréquences de Bohr de l'atome habillé correspondant aux paires d'états perturbés de la fig. 4 entre lesquels D a un élément de matrice non nul.

D ne couple l'état (perturbé) $|c, n\rangle$ qu'à l'état $|b, n\rangle$ (D ne change pas n). Or $|b, n\rangle$ n'apparaît que dans la multiplicité E_n formée de

$|1, n\rangle$ et $|2, n\rangle$. D'après (II, 33), on a en posant $\langle b | D | c \rangle = d'$,

$$\begin{cases} \langle 1, n | D | c, n \rangle = \langle 1, n | b, n \rangle \langle b, n | D | c, n \rangle = \cos \varphi d' \\ \langle 2, n | D | c, n \rangle = -\sin \varphi d' \end{cases} \quad (\text{II, 36})$$

Il y a donc 2 fréquences de Bohr dont la variations avec ω au voisinage de $\omega = \omega_0$ est représentée par les traits pleins de la fig. 5

La droite verticale d'abscisse ω représente la fréquence de l'onde laser incidente. IJ et IK donnent les fréquences apparaissant sur la raie bc lorsque la raie ab est saturée par un laser de fréquence ω , l'atome étant immobile par rapport au laser.

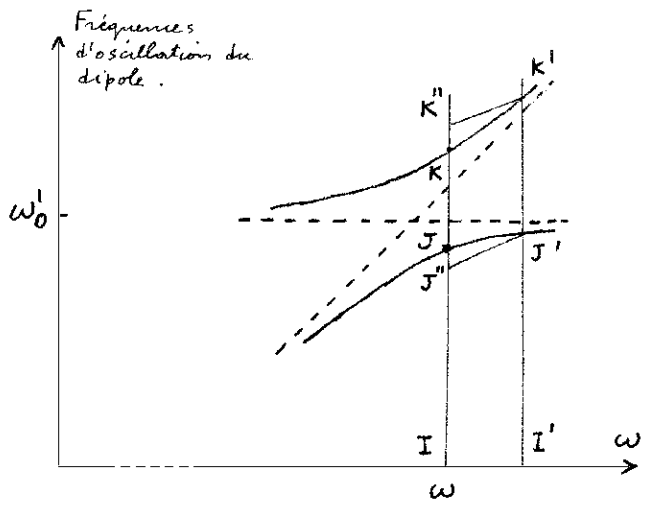


Fig. 5

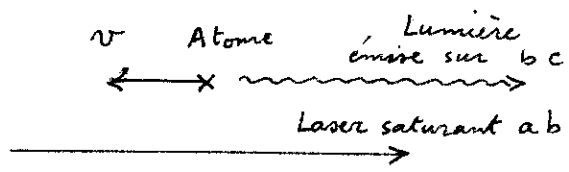
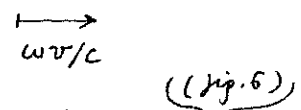


Fig. 6



Supposons maintenant que l'atome se déplace à la vitesse v dans le sens opposé au faisceau laser. Dans le référentiel au repos de cet atome, le laser semble avoir la fréquence $\omega + \omega \frac{v}{c}$ (droite d'abscisse $\omega + \omega \frac{v}{c}$ sur la fig. 5), et les fréquences susceptibles d'apparaître sur la transition bc seront données par I'J' et I'K'.

Si l'on regarde, dans le référentiel du laboratoire, cette lumière émise par l'atome sur bc dans le même sens que l'onde laser (flèche ondulée de la fig. 6), il faut corriger I'J' et I'K' de l'effet Doppler correspondant, c-à-d ajouter à I'J' et I'K' $-\omega_0 v/c$ (en effet, I'J' et I'K' sont très voisins de ω_0). Ces fréquences sont donc IJ'' et IK'', où J'' et K'' sont les intersections de la droite d'abscisse ω , avec les droites de pente ω_0/ω_0 menées à partir de J' et K'.

On dispose ainsi d'une construction géométrique très simple permettant de déterminer, pour chaque classe de vitesse, les fréquences émises sur la transition sonde dans le même sens que le laser saturant ab (ou dans le sens contraire, à condition de remplacer sur la fig. 5 la pente ω_0/ω_0 par $-\omega_0/\omega_0$).

But de ce chapitre :

Comme première application du formalisme de l'atome habillé, donner, à partir de ce point de vue, une présentation globale et synthétique de divers effets physiques importants de la Spectroscopie Hertzienne.

A. Caractéristiques de la Spectroscopie Hertzienne.

① Ce que l'on peut négliger en général.

- Emission spontanée.
- Effet Doppler.
- Autres niveaux atomiques (situés très loin, à des distances optiques).

② Ce que l'on peut réaliser aisément.

- Diverses polarisations du champ e.m. (vrais champs tournants, π, σ, \dots)
- Des champs intenses.

Les puissances RF et micro-ondes réalisables sont suffisantes pour obtenir des fréquences de Rabi ω_1 grandes devant la fréquence de Larmor (distance entre $|+\rangle$ et $|-\rangle$) ω_0 , ou ω , tout en restant suffisamment faibles devant les fréquences optiques, de sorte qu'on puisse toujours ignorer les autres niveaux.

③ Quelques procédés de détection.

- Sur l'atome lui-même (expériences type Rabi sur jets atomiques).
- Méthodes optiques : préparation par excitation optique en lumière polarisée de l'atome dans un sous-niveau bien défini - Détection de l'état atomique par observation de la lumière absorbée ou émise.
- Méthodes radiométriques : Mesure de la puissance RF absorbée.

B. La résonance magnétique ordinaire

Interaction avec ^(vrai) un champ tournant dans le plan \perp à \vec{B}_0 . Il est alors inutile de faire r.w.z. Le spin fictif coïncide avec le spin réel.

① Forme de la raie de résonance.

- Cas simple d'un niveau $J=1/2$ excité. Excitation en lumière σ^- (préparation de $|-\rangle$). Observation de la lumière σ^+ réémise (détection de $|+\rangle$)
- Probabilité de basculement du spin au bout d'un temps t : $P_{- \rightarrow +}(t)$

Etat initial : D'après (II-29) à (II-33), on a :

$$|\Psi(0)\rangle = |-, n+1\rangle = \sin \varphi |1, n\rangle + \cos \varphi |2, n\rangle \quad (\text{III-1})$$

Etat à l'instant t :

$$|\Psi(t)\rangle = \sin \varphi e^{-i\bar{\omega}t/2} |1, n\rangle + \cos \varphi e^{i\bar{\omega}t/2} |2, n\rangle \quad (\text{III-2})$$

$$\text{où } \bar{\omega} = \sqrt{\omega_2^2 + \delta^2} \quad \delta = \omega_0 - \omega \quad \text{tg } 2\varphi = \omega_1 / \delta \quad (\text{III-3})$$

Comme $|-, n+1\rangle$ n'est couplé qu'à $|+, n\rangle = \cos \varphi |1, n\rangle - \sin \varphi |2, n\rangle$, on en déduit que :

$$P_{- \rightarrow +}(t) = |\langle +, n | \psi(t) \rangle|^2 = \sin^2 2\varphi \sin^2 \frac{\bar{\omega} t}{2} = \frac{\omega_1^2}{\omega_1^2 + \delta^2} \left[\sin \sqrt{\omega_1^2 + \delta^2} t/2 \right]^2 \quad (\text{III-4})$$

Formule bien connue de Rabi. Interprétation corpusculaire dans: $|-, n+1\rangle \rightarrow |+, n\rangle$

- Probabilité que l'atome excité à $t=0$ se désexcite entre t et $t+dt$

$$\Gamma e^{-\Gamma t} dt \quad (\text{III-5})$$

$\Gamma = 1/\tau$: largeur naturelle du niveau excité (τ : durée de vie radiative)

- Probabilité de transition moyenne. Un calcul simple donne:

$$P_{- \rightarrow +} = \Gamma \int_0^\infty dt e^{-\Gamma t} P_{- \rightarrow +}(t) = \frac{1}{2} \frac{\omega_1^2}{(\omega_0 - \omega)^2 + \omega_1^2 + \Gamma^2} \quad (\text{III-6})$$

Forme de raie: Lorentzienne, centrée en $\omega_0 = \omega$, de largeur Γ pour $\omega, \ll \Gamma$ (largeur d'incertitude), de poids ω_1^2 pour $\omega, \ll \Gamma$, s'élargissant en ω , pour $\omega, \gg \Gamma$ (élargissement radiatif).

② Balayage adiabatique rapide

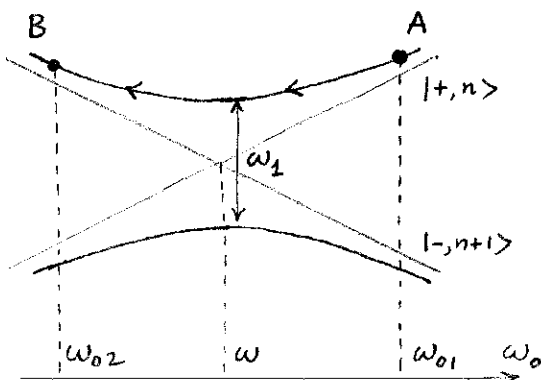


Fig. 1

- Partons à $t=0$ du système dans l'état perturbé voisin de $|+, n\rangle$ (point A de la fig. 1)
- Balayons ω_0 de ω_{01} à ω_{02} , suffisamment lentement pour que le système reste sur le même niveau (balayage adiabatique)
- A la fin du balayage (point B), on sera dans l'état perturbé voisin ^(de) $|-, n+1\rangle$, c-à-d que le spin aura basculé.
- Il faut bien sûr que le balayage de ω_{01} à ω_{02} dure un temps Θ suffisamment court pour que les processus dissipatifs n'aient pas eu le temps d'agir (balayage rapide)

- Condition adiabatique

$$\frac{\omega_{01} - \omega_{02}}{\Theta} \ll \omega_1^2$$

Comme $\omega_{01} - \omega_{02} > \omega_1$,

- Condition de balayage rapide $\Theta \ll T_R$ T_R : temps relaxation

les 2 conditions impliquent: $\omega_1 \gg 1/T_R$.

③ Effet Autler-Townes

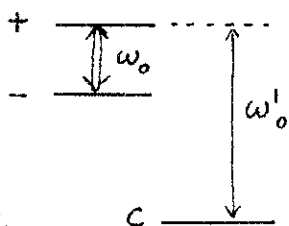


Fig 2

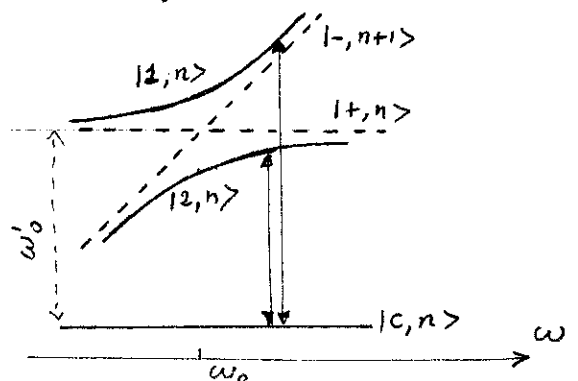


Fig. 3

On regarde l'évolution de la raie de résonance magnétique reliant le sous niveau + à un 3^{ème} sous niveau c (voir fig. 2) du même niveau atomique, lorsqu'on sature la transition - ↔ + à ω_0 (le sous niveau c n'est pas couplé de manière résonnante à l'onde qui sature - ↔ +)

La discussion des pages (II.8) et (II.9) s'applique intégralement. On trouve 2 raies correspondant aux 2 transitions $|1, n\rangle \leftrightarrow |c, n\rangle$ et $|2, n\rangle \leftrightarrow |c, n\rangle$ de l'atome habillé (voir fig. 3), avec des poids respectivement proportionnels aux carrés des coefficients de $|1, n\rangle$ dans $|1, n\rangle$ et $|2, n\rangle$, c-à-d à $\cos^2\varphi$ et $\sin^2\varphi$.

On obtient donc un doublet dont la séparation minimale est obtenue à résonance (les 2 raies ont alors même poids et sont séparées de ω_1).
 Le fait de saturer la transition $- \leftrightarrow +$ dédouble donc les autres transitions partageant un niveau commun avec la transition saturée. (intérêt pour l'identification des raies d'un spectre complexe de résonance magnétique).

C - Les processus d'ordre supérieur.

① Introduction

- On suppose maintenant que la polarisation du champ RF n'est plus σ^+ , de sorte que les niveaux de l'atome habillé (non-perturbés) ne sont plus couplés 2 à 2 par V
- Pour fixer les idées, on prendra une polarisation σ ($\vec{E} = \vec{E}_x$) linéaire, \perp à la direction Oz de \vec{B}_0 . D'après (II-23), on a alors :

$$V = -\gamma\beta_0 J_x (a+a^\dagger) \quad \text{(III-7)}$$

V change $|+\rangle$ en $|-\rangle$, $|-\rangle$ en $|+\rangle$ et $|n\rangle$ en $|n \pm 1\rangle$.
 Enfin $\gamma\beta_0 \sqrt{n} \approx \omega_1$.

- Il se produit alors des phénomènes nouveaux par rapport à la situation de B

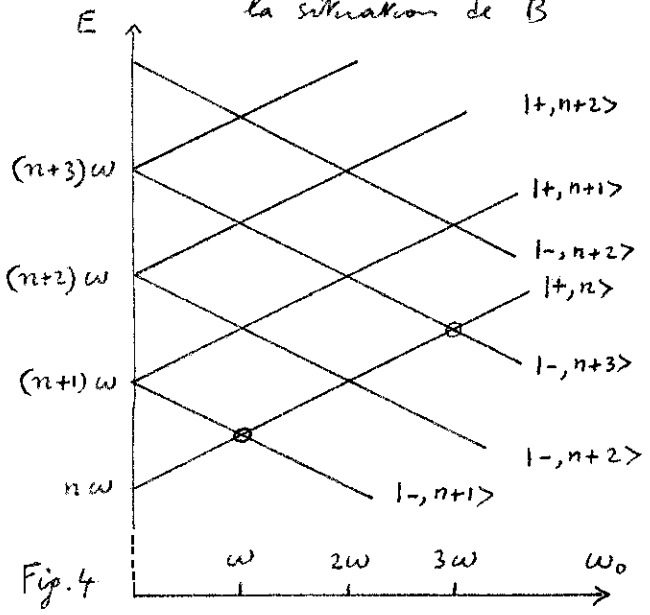


Fig. 4

(i) 2 niveaux non-perturbés de l'atome habillé peuvent se trouver dégénérés pour une certaine valeur de ω_0 et être couplés par V non directement, mais indirectement via un certain nombre d'intermédiaires.

Par exemple $|-, n+3\rangle$ et $|+, n\rangle$ se couplent en $\omega_0 = 3\omega$ (voir fig. 4), et sont couplés au 3^{ème} ordre via les états $|+, n+2\rangle$ et $|-, n+1\rangle$:

$$|-, n+3\rangle \leftrightarrow |+, n+2\rangle \leftrightarrow |-, n+1\rangle \leftrightarrow |+, n\rangle$$

Ceci est à l'origine de résonances nouvelles.

(ii) Les 2 niveaux $|-, n+1\rangle$ et $|+, n\rangle$ qui se couplent en $\omega_0 = \omega$ sont, non seulement couplés directement l'un à l'autre comme

en B, mais sont de plus maintenant couplés à des niveaux plus éloignés $|+, n\rangle \leftrightarrow |-, n-1\rangle$ et $|-, n+1\rangle \leftrightarrow |+, n+2\rangle$.

Ceci est à l'origine d'un déplacement de la résonance magnétique (Bloch-Siegert)

- L'intérêt de la spectroscopie hertzyenne est qu'elle permet d'étudier simplement les divers effets, car le nombre de niveaux atomiques entrant en jeu est fini.

② Anticroisements d'ordre supérieur.

(i) Étude perturbative (par opérateurs de projection et développement de Wigner - Brillouin).

- On se place au voisinage du point où 2 états non-perturbés de l'atome habillé se croisent (par exemple en $\omega_0 = 3\omega$, $|i\rangle = |-, n+3\rangle$ et $|j\rangle = |+, n\rangle$). On considère le projecteur P sur le sous-espace $E \{ |i\rangle, |j\rangle \}$

$$P = |i\rangle\langle i| + |j\rangle\langle j| \quad \varphi = 1 - P \quad (\text{III-8})$$

- Un calcul très connu (cf cours 75-76 pages V-1 à V-3) permet de calculer la restriction de $\frac{1}{z-H}$ à E

$$P \frac{1}{z-H} P = \frac{P}{z - PH_0P - PR(z)P} \quad (\text{III-9})$$

où
$$R(z) = V + V \frac{\varphi}{z-H_0} V + V \frac{\varphi}{z-H_0} V \frac{\varphi}{z-H_0} V + \dots \quad (\text{III-10})$$

Structure de $R(z)$: produits d'éléments de matrice de V et de dénominateurs d'énergie (non perturbés), tous les états intermédiaires étant extérieurs à E

- Dans le problème qui nous intéresse ici, le spectre non-perturbé est discret. Donc $\frac{1}{z-H}$ (et par suite $P \frac{1}{z-H} P$) n'a que des poles situés sur l'axe réel et correspondant aux valeurs propres de H . Pour trouver ces valeurs propres perturbées, en particulier au voisinage du croisement $|i\rangle |j\rangle$, il faut donc trouver pour quelles valeurs réelles E de z , le dénominateur de (III-9) s'annule:

$$EP - PH_0P - PR(E)P = 0 \quad (\text{III-11})$$

Equations aux valeurs propres de l'opérateur $PH_0P + PR(E)P$ représenté par la matrice:

$$\begin{pmatrix} E_i + R_{ii}(E) & R_{ij}(E) \\ R_{ji}(E) & E_j + R_{jj}(E) \end{pmatrix} \quad (\text{III-12})$$

Equations implicite car la valeur propre perturbée E apparaît dans les R .

- Approximations.

(à faible niveau de RF)
Si $V=0$, $R=0$. Donc les R sont petits et, au voisinage du croisement $|i\rangle |j\rangle$, on peut remplacer dans les $R(E)$ E par la valeur E_0 correspondant au croisement des $|i\rangle |j\rangle$ (voir fig. 4 : $E_0 = (n + \frac{3}{2})\omega$). De plus, on peut calculer chaque $R(E_0)$ à l'ordre le plus bas où il apparaît (notations $\tilde{R}(E_0)$). On obtient alors un hamiltonien effectif à 2 niveaux dans le sous-espace E :

$$\begin{pmatrix} E_i + \tilde{R}_{ii}(E_0) & \tilde{R}_{ij}(E_0) \\ \tilde{R}_{ji}(E_0) & E_j + \tilde{R}_{jj}(E_0) \end{pmatrix} \quad (\text{III-12})$$

- Possibilité de reporter les valeurs propres de (III-12) comme meilleure approximation de E dans les $R(E)$ de (III-12). En même temps, calcul des $R(E)$ à des ordres plus élevés que ceux auxquels ils apparaissent.
Point de départ d'un calcul itératif des énergies perturbées à tous les ordres en ω_1 .

(ii) Caractéristiques de l'anticroisement.

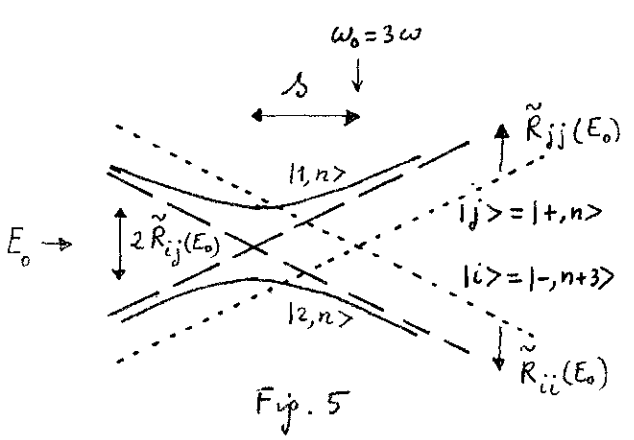


Fig. 5

Poinçillés : Energies non perturbées (en fonction de \$\omega_0\$) de \$|i\rangle\$ et \$|j\rangle\$ se croisant en \$\omega_0 = 3\omega\$ \$E_0 = (n + \frac{3}{2})\omega\$

Triets : Energies non perturbées précédentes corrigées des éléments diagonaux \$\tilde{R}_{ii}(E_0)\$ et \$\tilde{R}_{jj}(E_0)\$.

\$|i\rangle = |-, n+3\rangle\$ est couple à \$|+, n+2\rangle\$ et \$|+, n+4\rangle\$ qui, au voisinage de \$\omega_0 = 3\omega\$, sont au dessus de \$|i\rangle\$. Donc \$\tilde{R}_{ii}(E_0) < 0\$. De même \$|j\rangle = |+, n\rangle\$ est couple à \$|-, n+1\rangle\$ et \$|-, n-1\rangle\$ qui sont au dessous de \$|j\rangle\$ et \$\tilde{R}_{jj}(E_0) > 0\$.

Donc, sous l'effet de \$\tilde{R}_{ii}(E_0)\$ et \$\tilde{R}_{jj}(E_0)\$, le croisement est déplacé vers la gauche d'une quantité \$\delta\$ du 2^e ordre en \$V\$, donc en \$\omega^2\$ (voir III-10).

Trait, pôleis : Niveaux perturbés obtenus lorsqu'on vient compte de l'élément non diagonal \$\tilde{R}_{ij}(E_0)\$ de (III-12). Hyperbole admettant les triets pour asymptotes et dont l'écart entre les 2 sommets est donné par \$2\tilde{R}_{ij}(E_0)\$, donc en \$\omega^3\$ (d'après III-10).
Donc, finalement, anticroisement déplacé vers la gauche en \$\omega^2\$ et de "force" \$\omega^3\$.

③ Transitions multiphotoniques

(i) Caractéristiques des résonances à plusieurs photons.

Une fois la diagonalisation de (III-12) effectuée, le calcul de la probabilité de basculement du spin \$|<+, n| U(t) |-, n+3\rangle|^2\$ est très analogue à celui du § B1. Après moyenne sur les temps dans l'état excité, on trouve l'existence d'une transition à 3 photons (\$|-, n+3\rangle \to |+, n\rangle\$), résonnante au voisinage de \$\omega_0 = 3\omega\$. En fait, la résonance est centrée en \$\omega_0 = 3\omega - \delta\$; elle subit donc un déplacement radiatif en \$\omega^2\$. Pour \$\omega, \gg P\$ elle s'élargit en \$\tilde{R}_{ij}(E_0)\$. Cette résonance subit donc un élargissement radiatif en \$\omega^3\$.

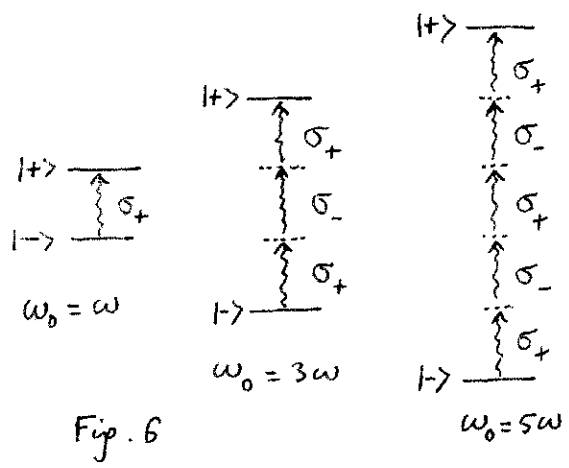
Résultats analogues au voisinage de \$\omega_0 = 5\omega, 7\omega, 9\omega \dots (2n+1)\omega \dots\$ Déplacements toujours en \$\omega^2\$. Élargissements en \$\omega^5, \omega^7, \omega^9 \dots (\omega^2)^{2n+1} \dots\$

Remarque : Pour un calcul plus précis, il faut améliorer les approximations conduisant à (III-12). D'autre part, la probab. comme \$|-, n+3\rangle\$ n'est pas seulement couple à \$|+, n\rangle\$, la probabilité de basculement du spin est en réalité \$\sum_{n'} |<+, n'| U(t) |-, n+3\rangle|^2\$ (le terme le plus important de cette somme au voisinage de \$\omega_0 = 3\omega\$ étant bien sûr celui correspondant à \$n' = n\$). Un calcul plus précis de la probabilité de ~~basculer~~ basculement du spin, reliant cette grandeur à la pente des niveaux perturbés, est présentée dans le § ⑤ ci-dessous.

(ii) Interprétation corpusculaire
(du champ oscillant)

Décomposition de la polarisation linéaire \$\sigma\$ en 2 champs tournants droits et gauche \$\sigma^+\$ et \$\sigma^-\$ vers photons ayant un moment cinétique le long de \$Oz\$ égal à \$+1\$ ou \$-1\$.

Interprétation des résonances en termes de conservation de l'énergie global (du spin et des photons) et du moment cinétique global le long de \$Oz\$.



Remarques

- Pas de spectre "pair" : $\omega_0 = 2\omega, 4\omega, \dots$
 Impossibilit  de conserver   la fois l' nergie globale et le moment cin tique global au cours de la transition.
- Apparition du spectre pair (et impair) pour une polarisation lin aire et faisant avec Oz un angle $\theta (\neq 0, \frac{\pi}{2})$
 Superposition lin aire  tats de polarisation σ^+, π, σ^- .

4) Calcul plus rigoureux de la probabilit  de basculement du spin

(i) Probabilit  de basculement du spin   la limite des processus d'impulsions tr s faibles

Partons de l' tat $|-, n+3\rangle$ en on peut toujours d velopper dans la base des  tats perturb s $\{|i, n\rangle\}$ ($i=1, 2, n$ quelconque, voir fig. 5).

On peut n gliger toutes les "coh rences" entre 2  tats perturb s diff rents de ce d veloppement car elles oscillent   des fr quences non nulles et, grand on les moyenne sur les temps pass  dans l' tat excit    la limite, elle donnent une contribution nulle   la limite $\Gamma \rightarrow 0$

$$\text{Re} \int_0^\infty e^{i\omega_{ij}t} e^{-\Gamma t} dt \rightarrow 0 \quad \text{si } \Gamma \rightarrow 0 \text{ avec } \omega_{ij} \neq 0$$

Seules, les populations des  tats $|i, n'\rangle$ apparaissant dans le d veloppement de $|-, n+3\rangle$ sont non nulles ^{en moyenne stationnaire} et valent $|\langle i, n' | -, n+3 \rangle|^2$. La probabilit  d'avoir le spin dans l' tat $|+\rangle$ lorsque le syst me est dans l' tat $|i, n'\rangle$ est $\sum_{n''} |\langle +, n'' | i, n' \rangle|^2$.

Finalement, la probabilit  de basculement moyenne vaut :

$$P_{- \rightarrow +} = \sum_{\substack{i=1,2 \\ n', n''}} |\langle +, n'' | i, n' \rangle|^2 |\langle i, n' | -, n+3 \rangle|^2 \quad (\text{III-13})$$

(ii) Lien entre la pente d'un niveau perturb  (en fonction de ω_0) et la probabilit  de trouver le spin dans l' tat $|+\rangle$ ou $|-\rangle$ dans cet  tat.

- Soit $\bar{\omega}/2$ et $-\bar{\omega}/2$ les  nergies par rapport   E_0 des  tats $|1, n\rangle$ et $|2, n\rangle$ de la figure 5.

$$(\omega_0 J_3 + \omega a^\dagger a + V) |1, n\rangle = (E_0(n) \pm \frac{\bar{\omega}}{2}) |1, n\rangle \quad (\text{III-14})$$

D rivons par rapport   ω_0 les 2 membres de cette  quation

$$J_3 |1, n\rangle + H \frac{d}{d\omega_0} |1, n\rangle = \pm \frac{1}{2} \left(\frac{d}{d\omega_0} \bar{\omega} \right) |1, n\rangle + \left(E_0(n) \pm \frac{\bar{\omega}}{2} \right) \frac{d}{d\omega_0} |1, n\rangle \quad (\text{III-15})$$

et projetons sur $\langle 1, n |$. On obtient

$$\begin{aligned} \langle 1, n | J_3 | 1, n \rangle &= \frac{1}{2} \frac{d\bar{\omega}}{d\omega_0} \\ \langle 2, n | J_3 | 2, n \rangle &= -\frac{1}{2} \frac{d\bar{\omega}}{d\omega_0} \end{aligned} \quad (\text{III-16})$$

- Projecteurs P_+ et P_- sur les états $+$ et $-$ du spin :

$$P_{\pm} = \frac{1}{2} \pm J_3 \quad (\text{III-17})$$

Donc

$$\langle 1, n' | P_{\pm} | 1, n' \rangle = \sum_{n''} |\langle \pm, n'' | 1, n' \rangle|^2 = \langle 1, n' | \frac{1}{2} \pm J_3 | 1, n' \rangle = \frac{1}{2} \left(1 \pm \frac{d\bar{\omega}}{d\omega_0} \right)$$

$$\langle 2, n' | P_{\pm} | 2, n' \rangle = \sum_{n''} |\langle \pm, n'' | 2, n' \rangle|^2 = \langle 2, n' | \frac{1}{2} \pm J_3 | 2, n' \rangle = \frac{1}{2} \left(1 \mp \frac{d\bar{\omega}}{d\omega_0} \right) \quad (\text{III-18})$$

(iii) Liens entre $P_{-\rightarrow+}$ et $d\bar{\omega}/d\omega_0$

- En reportant (III-18) dans (III-13), on obtient :

$$P_{-\rightarrow+} = \sum_{n'} |\langle 1, n' | -, n+3 \rangle|^2 \frac{1}{2} \left(1 + \frac{d\bar{\omega}}{d\omega_0} \right) + \sum_{n'} |\langle 2, n' | -, n+3 \rangle|^2 \frac{1}{2} \left(1 - \frac{d\bar{\omega}}{d\omega_0} \right) \quad (\text{III-19})$$

- D'après la périodicité (locale) du diagramme d'énergie et (III-18) :

$$\sum_{n'} |\langle 1, n' | -, n+3 \rangle|^2 = \sum_n |\langle 1, n' | -, n+3 \rangle|^2 = \frac{1}{2} \left(1 - \frac{d\bar{\omega}}{d\omega_0} \right)$$

$$\sum_{n'} |\langle 2, n' | -, n+3 \rangle|^2 = \sum_n |\langle 2, n' | -, n+3 \rangle|^2 = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{d\bar{\omega}}{d\omega_0} \right) \quad (\text{III-20})$$

- En reportant (III-20) dans (III-19), on obtient finalement :

$$P_{-\rightarrow+} = \frac{1}{2} \left[1 - \left(\frac{d\bar{\omega}}{d\omega_0} \right)^2 \right] \quad (\text{III-21})$$

Cette formule relie directement la probabilité de basculement du spin à la pente des niveaux perturbés.

On voit sur (III-21) que $P_{-\rightarrow+}$ est maximale aux points où la pente des niveaux perturbés est nulle ($P_{-\rightarrow+}$ vaut alors $1/2$), et tend vers zéro près des asymptotes (ou $\frac{d\bar{\omega}}{d\omega_0} = \pm 1$).

⑤ Déplacement de Bloch-Siegert

- Le couplage de $|+, n\rangle$ à $|-, n-1\rangle$ qui, en $\omega_0 = \omega$, est au dessous de $|+, n\rangle$ déplace $|+, n\rangle$ vers le haut. De même, le couplage de $|-, n+1\rangle$ à $|+, n+2\rangle$ qui est au dessous de $|-, n+1\rangle$ déplace $|-, n+1\rangle$ vers le bas.

L'anticroisement qui apparaît lorsqu'on tient compte du couplage direct entre $|-, n+1\rangle$ et $|+, n\rangle$ est donc déplacé vers les champs magnétiques faibles (situation analogue à celle de la fig. 5).

Conclusion : Lorsqu'on fait la résonance magnétique, non avec un champ tournant, mais avec un champ de polarisation linéaire σ , la résonance est déplacée vers les champs bas en ω_1^2 (effet Bloch-Siegert)

- Un calcul perturbatif simple des éléments diagonaux de $\tilde{R}(E_0)$ donne à partir de (III-10) la position de la résonance (on a posé

$$\omega_1 = 2 \langle -, n+1 | V | +, n \rangle : \quad \omega_0 = \omega - \frac{\omega_1^2}{16\omega} \quad (\text{III-22})$$

- Un calcul itératif poussé plus loin (voir fin § 2i) donne l'abscisse du point où la tangente aux niveaux perturbés est horizontale (c-à-d d'après ④), l'abscisse du centre de la résonance, sous forme d'un développement en puissances de ω_1 , (C. Fabre, Thèse 3^{ème} cycle, Paris 1974)

$$\omega_0 = \omega - \frac{1}{\omega} \left(\frac{\omega_1}{4} \right)^2 - \frac{5}{4\omega^3} \left(\frac{\omega_1}{4} \right)^4 - \frac{61}{32\omega^5} \left(\frac{\omega_1}{4} \right)^6 + \dots \quad (\text{III-23})$$

(voir aussi C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, C. Fabre J. Phys B 6, L214 et L218 (1973)).

⑥ Quelques résultats expérimentaux

Fig. 7

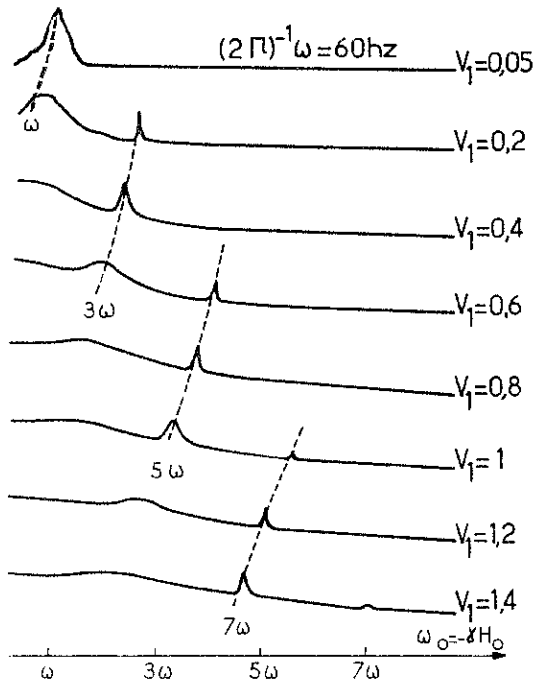


Fig. 7 : Transitions à plusieurs quanta entre les 2 sous-niveaux Zeeman de l'état fondamental de ^{199}Hg ($I = 1/2$) Polarisation RF : σ . On voit clairement le déplacement et l'élargissement radiatif des résonances (S. Haroche, thèse Paris 1971 Ann. Phys. (1971) 6 189 et 327)

Fig. 8 : Première observation expérimentale des transitions à plusieurs quanta dans l'état fondamental de Na. (J. Brosse, B. Cagnac, A. Kastler J. de Phys. (1954) 15, 6)

Voir fig 9 et légende de cette figure pour l'interprétation des diverses résonances.

Voir aussi : J.M. Winter Thèse Paris 1958 Ann. Phys (1959), 4, 745

Fig. 9

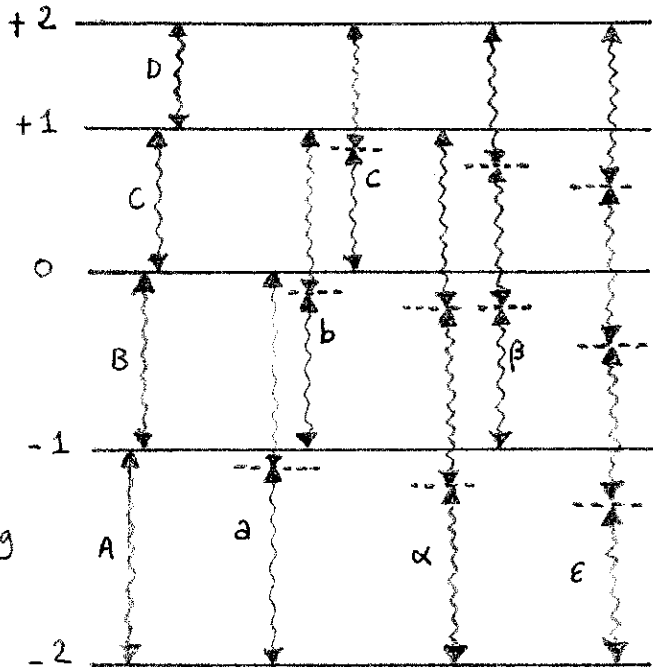


Fig. 8

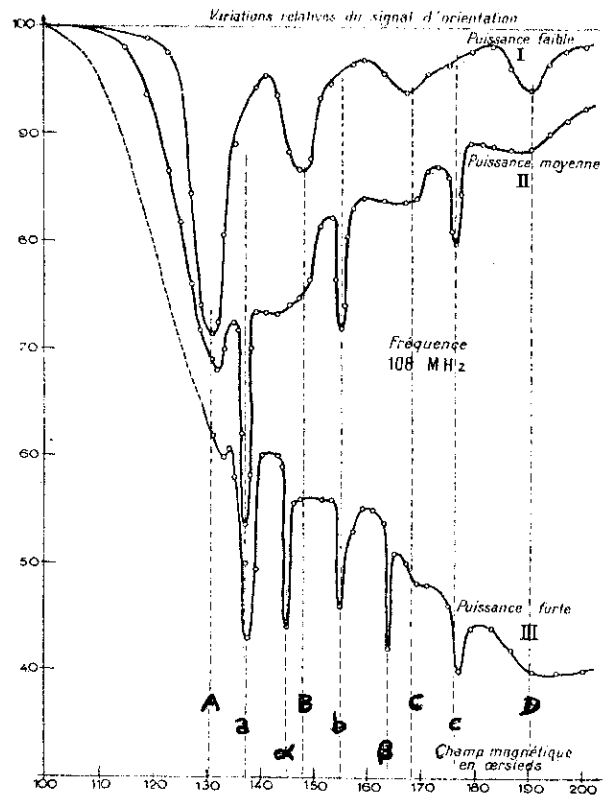


Fig 9 : Position des 5 sous-niveaux Zeeman de l'état hyperfin $F=2$ de l'état fondamental de Na. Par suite de l'effet Back - jordanit, les 5 sous-niveaux ne sont pas équidistants (différences exagérées sur la figure). Pour simplifier, on n'a pas représenté le niveau hyperfin $F=1$

A, B, C, D : Transitions à 1 quantum $-2 \rightarrow -1, -1 \rightarrow 0, 0 \rightarrow +1, +1 \rightarrow +2$ ($\Delta M = 1$)

a, b, c : Transitions à 2 quanta $-2 \rightarrow 0, -1 \rightarrow +1, 0 \rightarrow +2$ ($\Delta M = 2$) apparaissant à puissance RF plus élevée

α, β : Transitions à 3 quanta $-2 \rightarrow +1, -1 \rightarrow +2$ ($\Delta M = 3$) (puissance RF encore + élevée)

E : Transition à 4 quanta $-2 \rightarrow +2$ ($\Delta M = 4$) (Non observée par manque de puissance RF)

Expérimentalement, on variait ω_0 , ω étant fixé.

Survol de la Spectroscopie Hertzienne (suite)

D. Résonances de cohérence.

① Existence de croisements de niveaux dans le diagramme de l'atome habillé.

Existence de valeurs de ω_0 où 2 niveaux non-perturbés se croisent (donc, possibilité a priori de transitions multiphotoniques), mais ne sont couplés à aucun ordre par V , de sorte que les niveaux perturbés correspondants, éventuellement déplacés, continuent à se croiser (pas d'anticroisement d'ordre supérieur)

Exemples

(i) RF polarisation σ^+ (champ RF tournant \perp à \vec{B}_0)

Pb exactement soluble : on obtient une série d'hyperboles (Fig. 1) et un certain nombre de croisements de niveaux perturbés apparaissent.

Quand ω_1 augmente, la distance entre les 2 sommets augmente et les 2 croisements entourés d'un rond se rapprochent l'un de l'autre.

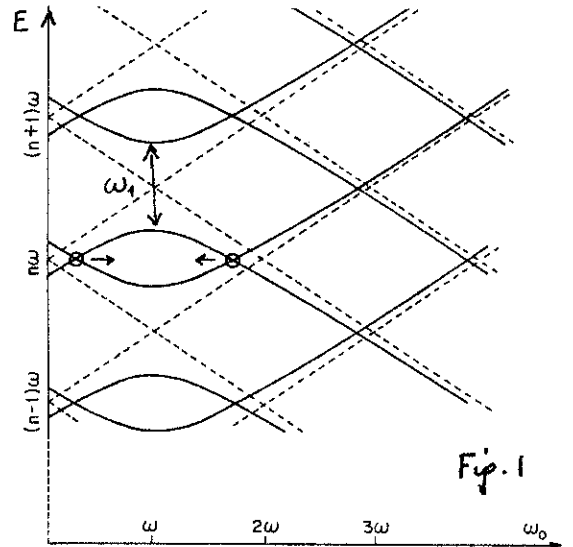


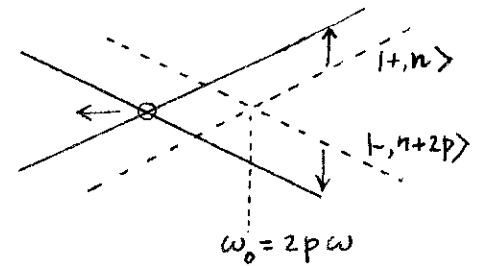
Fig. 1

(ii) RF Polarisation σ (Polaris. linéaire \perp à \vec{B}_0)

$|+, n\rangle$ et $|-, n+2p\rangle$ se croisent en $\omega_0 = 2p\omega$ ($p=0, 1, 2, 3 \dots$)
Nécessité d'absorber un nombre impair de photons (σ_+ ou σ_-) pour passer de $|-\rangle$ à $|+\rangle$ ($\Delta M=1$), alors que les états qui se croisent diffèrent par un nombre pair de photons. Donc aucun couplage possible à tous les ordres.

$|+, n\rangle$ couple à $|-, n \pm 1\rangle$ situés au dessous lui au voisinage de $\omega_0 = 2p\omega$ est déplacé vers le haut (Fig. 2). De même $|-, n+2p\rangle$ couple à $|+, n+2p \pm 1\rangle$ situés au dessus est déplacé vers le bas. Donc le croisement est déplacé vers les champs bas (en ω_1^2).

Fig. 2



(iii) RF Polarisation π (Polaris. linéaire \parallel à \vec{B}_0)

Croisement en $\omega_0 = p\omega$ de $|-, n+p\rangle$ et $|+, n\rangle$ ($p=0, 1, 2 \dots$)
Les photons π ont un moment cinétique nul / Oz . Donc, absorbée un nombre quelconque de photons π ne peut apporter le moment cinétique nécessaire au basculement du spin de $|-\rangle$ à $|+\rangle$.

Conclusion

En ces points de croisement, des arguments de symétrie interdisent aux transitions multiphotoniques correspondantes de satisfaire à la fois la conservation de l'énergie globale et celle du moment cinétique global \rightarrow impossibilité de transitions multiphotoniques réelles entre les 2 états atomiques.

② Existence de signaux résonnants observables en ces points de croisement.

Analogie avec les résonances de croisement de niveaux d'un atome libre, bien connues en Physique Atomique (effets Hanle, Franken).

La contamination des états perturbés qui se croisent par d'autres états non-perturbés lointains (interprétation de ces contaminations en termes d'absorptions ou d'émissions virtuelles de photons par l'atome) est responsable de l'apparition d'une fréquence de Bohr très basse (nulle au point de croisement) sur les grandeurs atomiques "transversales" (perpendiculaires au champ statique B_0).

Si l'on effectue un pompage optique transversal (préparation initiale du spin dans un état propre de J_x ou J_y), possibilité d'annuler la précession de Larmor du moment transversal atomique au point de croisement puisqu'il n'évolue pas en ce point, donc de l'accumuler. Donc résonances apparaissant sur des signaux proportionnels à ce moment transversal.

Exemple : résonance $\omega_0 = 2\omega$ (en polarisation σ^+ ou σ^-)

$$\begin{cases} |-, n+2\rangle \rightarrow \overline{|-, n+2\rangle} = |-, n+2\rangle + \epsilon |+, n+1\rangle + \dots \\ |+, n\rangle \rightarrow \overline{|+, n\rangle} = |+, n\rangle + \epsilon' |-, n+1\rangle + \dots \end{cases} \quad (IV-1)$$

$$\langle \overline{|-, n+2\rangle} | J_x | \overline{|+, n\rangle} \rangle = \epsilon \epsilon' \langle +, n+1 | J_x | -, n+1 \rangle + \dots = \epsilon \epsilon' + \dots \neq 0 \quad (IV-2)$$

Donc existence d'une composante basse fréquence dans le mouvement de $\langle J_x \rangle$, de fréquence nulle au point de croisement des 2 états perturbés ($\omega_0 \approx 2\omega$)

③ Quelques résultats expérimentaux

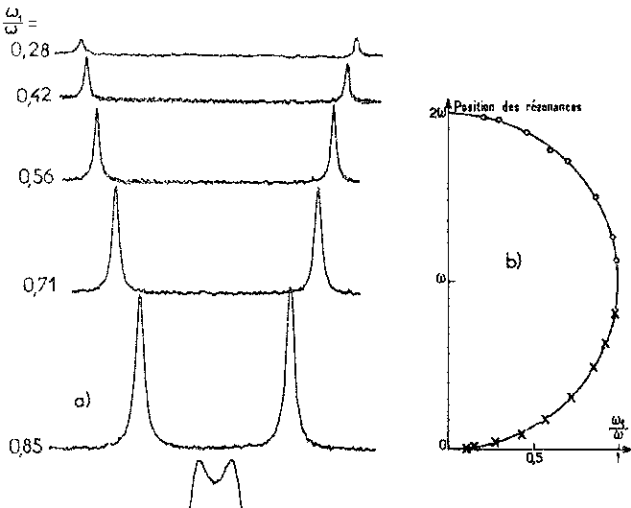


Fig. 3

(i) Polarisation σ^+

Voir M. Le Douvenecq thèse 3^{em} cycle Paris 1972

Fig 3 : Résonance $\omega_0 \approx 0$ et $\omega_0 \approx 2\omega$ pour de valeurs croissantes de ω , le déplacement des 2 résonances l'une vers l'autre quand $\omega_1 \uparrow$ apparaît clairement. (J_x n'a pas d'élément de matrice entre les états perturbés qui se croisent en $\omega_0 = 3\omega, 4\omega, 5\omega \dots$, donc pas d'autres résonances)

Fig 4 : Position des 2 résonances en fonction de ω_1/ω (Prédiction théorique : 1/2 cercle)

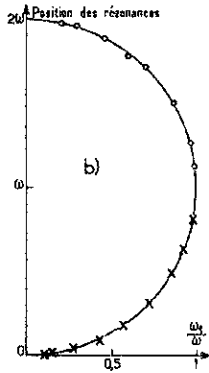


Fig. 4

(ii) Polarisation σ^-

voir S. Harsche thèse 3^{em} cycle Paris 1967 C. Cohen-Tannoudji et S. Harsche C.R. (1965), 261, 5400

Fig 5 : Résonance $\omega_0 = 2\omega$ pour diverses valeurs de ω , (mesuré par le voltage V_1 de la RF)

Fig. 6 : Résonance $\omega_0 = 4\omega$ pour diverses valeurs de ω ,

les déplacements radiaux des résonances apparaissent clairement.

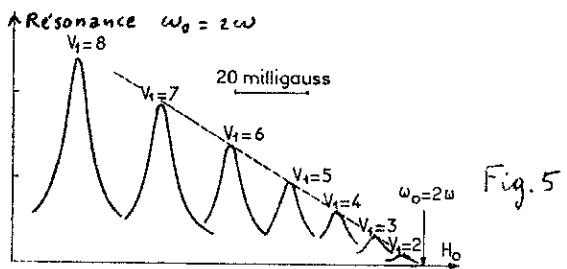


Fig. 5

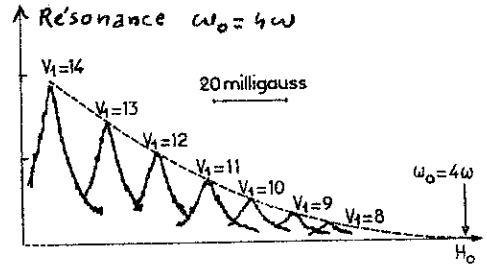


Fig. 6

Intérêt des résonances de cohérence : très fines . S'élargissent très peu quand ω_1 croît .

Aucun élargissement radiatif en polarisation \uparrow (N. Polonsky Thèse 3^e cycle Paris 1966) .

Très facile élargissement en σ^+ ou σ^- (du à la variation de pente des niveaux qui se croisent)

Possibilité de tester de manière beaucoup plus précise que pour les résonances magnétiques ordinaires (qui s'élargissent beaucoup plus vite) les termes d'ordre \gg dans le déplacement radiatif . (C. Fabre, références cités plus haut) .

E. Modification des propriétés magnétiques de l'atome habillé

① Position du problème

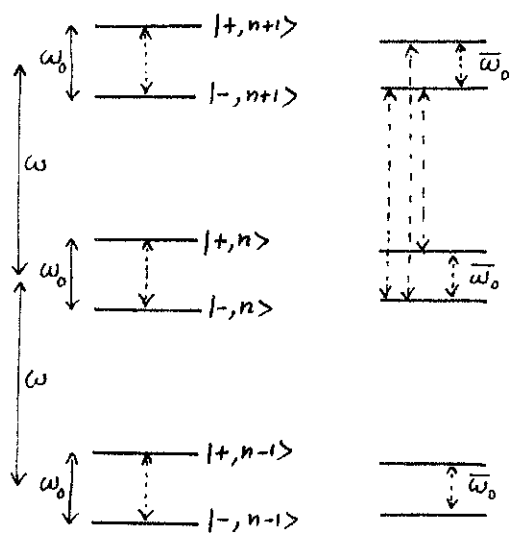


Fig 7a

Fig 7b

- On considère un spin $1/2$ dans un champ statique B_0 . Fréquence de Larmor ω_0
 Photons RF : Fréquence ω
 On suppose le champ statique très faible
 $\omega \gg \omega_0$ (IV-3)

- On néglige d'abord le couplage entre le spin et les photons RF . La fig. 7a donne les niveaux non perturbés de l'atome habillé . La seule fréquence de Bohr apparaissant dans le mouvement du spin est ω_0 (flèche verticale en pointillés) (fig. 7b)

- On introduit le couplage : les niveaux sont légèrement déplacés et les fonctions d'onde. Quelles sont les manifestations physiques de ce couplage?

(i) Nouvelles fréquences de Bohr apparaissant au voisinage de ω : mouvement forcé du spin dans le champ RF

(ii) Modification du mouvement base fréquence . La fréquence change de ω_0 à $\bar{\omega}_0$ (Si $\omega_0 - \bar{\omega}_0$ est proportionnel à ω_0 , interprétation de cet effet comme due à une variation du facteur g). Par suite de la contamination des fonctions d'onde, la précession de Larmor n'est plus circulaire (anisotropie des propriétés magnétiques)

- Dans ce §, nous nous attachons à l'étude du point (ii): Modification des propriétés magnétiques d'un spin $1/2$ interagissant avec des photons RF haute fréquence non résonnante .

- On se limite à une polarisation RF linéaire σ , \perp à \vec{B}_0

Hamiltonien

$$H = \underbrace{\omega_0 J_z}_{H_0} + \underbrace{\omega a^\dagger a + \lambda J_x (a + a^\dagger)}_V \quad (IV-4)$$

Comme $\omega_0 \ll \omega$, on ne fait pas r.w.a.

Lien entre la constante de couplage $\lambda = -\gamma \beta_0$ et la fréquence $\omega_1 = -\gamma B_1$ associée au champ classique $B_1 \cos \omega t \vec{e}_x$.

$$\omega_1 = 2 \lambda \sqrt{n} \quad (IV-5)$$

② Etude perturbative

$\omega_1 \ll \omega$

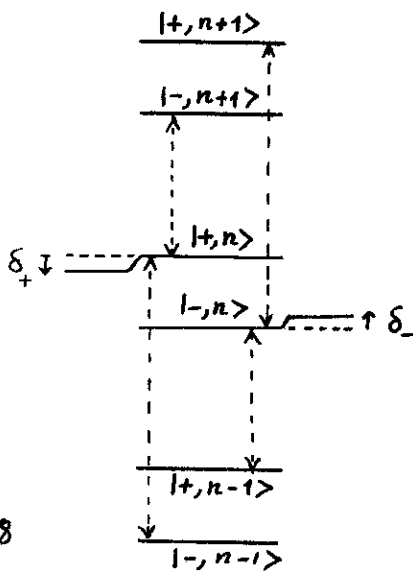


Fig. 8

(i) Modification fréquence de Larmor

- L'état non perturbé $|+,n\rangle$ est couplé par V à $|-,n+1\rangle$ et $|-,n-1\rangle$ (flèches verticales partant de $|+,n\rangle$ sur la fig. 8). D'après (IV-4) et (IV-5) les 2 éléments de matrice correspondants de V sont égaux et valent $\omega_1/4$.

$|-,n+1\rangle$ repousse $|+,n\rangle$ vers le bas, $|-,n-1\rangle$ repousse $|+,n\rangle$ vers le haut. Comme $|-,n+1\rangle$ est plus proche (distance $\omega - \omega_0$) que $|-,n-1\rangle$ (distance $\omega + \omega_0$), le déplacement global δ_+ de $|+,n\rangle$ est négatif et vaut :

$$\delta_+ = \left(\frac{\omega_1}{4}\right)^2 \left[-\frac{1}{\omega - \omega_0} + \frac{1}{\omega + \omega_0} \right] = -\frac{\omega_1^2 \omega_0}{8(\omega^2 - \omega_0^2)} \approx -\frac{\omega_1^2 \omega_0}{8\omega^2}$$

(IV-6)

car $\omega \gg \omega_0$.

- Un calcul analogue montre que le déplacement δ_- de $|-,n\rangle$ est positif et égal à $-\delta_+$.

- Finalement, la fréquence de Larmor ω_0 devient $\bar{\omega}_0$ où

$$\bar{\omega}_0 = \omega_0 + \delta_+ - \delta_- = \omega_0 + 2\delta_+ = \omega_0 - \frac{\omega_1^2}{4\omega^2} \omega_0 = \omega_0 \left(1 - \frac{\omega_1^2}{4\omega^2}\right)$$

(IV-7)

Tout se passe comme si le facteur g était diminué par un facteur $\left(1 - \frac{\omega_1^2}{4\omega^2}\right)$

$$g \rightarrow \bar{g} = g \left(1 - \frac{\omega_1^2}{4\omega^2}\right)$$

(IV-8)

- Interprétation classique de cet effet

le spin effectue un mouvement de précession forcée autour de $\vec{B}_1 \cos \omega t$, à la fréquence $\omega \gg \omega_0$.

Au cours de ce mouvement de précession, il garde une longueur constante (fig. 9), de sorte que la résultante moyenne au cours d'une période a une longueur plus petite (traits pointillés de la fig. 9).



Fig. 9

(ii) Modification de la précession de Larmor

- Etats perturbés

$$\begin{aligned} |+,n\rangle &\rightarrow \overline{|+,n\rangle} = N_+ \left[|+,n\rangle - \frac{\omega_1}{4(\omega - \omega_0)} |-,n+1\rangle + \frac{\omega_1}{4(\omega + \omega_0)} |-,n-1\rangle + \dots \right] \\ |-,n\rangle &\rightarrow \overline{|-,n\rangle} = N_- \left[|-,n\rangle - \frac{\omega_1}{4(\omega + \omega_0)} |+,n+1\rangle + \frac{\omega_1}{4(\omega - \omega_0)} |+,n-1\rangle + \dots \right] \end{aligned}$$

(IV-9)

N_{\pm} coefficients de normalisation

$$N_+ = N_- \approx 1 - \frac{\omega_1^2}{16} \left(\frac{1}{(\omega - \omega_0)^2} + \frac{1}{(\omega + \omega_0)^2} \right)$$

- On en déduit :

$$\langle -,n | J_x | +,n \rangle = N^2 \frac{1}{2} \left[1 + \frac{\omega_1^2}{8(\omega^2 - \omega_0^2)} \right]$$

(IV-10)

$$\langle -,n | J_y | +,n \rangle = N^2 \frac{i}{2} \left[1 - \frac{\omega_1^2}{8(\omega^2 - \omega_0^2)} \right]$$

Alors que $|\langle -,n | J_x | +,n \rangle| = |\langle -,n | J_y | +,n \rangle|$, $|\langle -,n | J_x | +,n \rangle| > |\langle -,n | J_y | +,n \rangle|$
La précession de Larmor ne se fait plus sur un cercle.

③ Traitement non perturbatif (à tous les ordres en ω_1/ω)

(i) Diagonalisation de l'hamiltonien en champ statique nul

- Pour $\omega_0 = 0$, $H = H'_0 = \omega a^\dagger a + \lambda J_x (a + a^\dagger)$ (IV-11)

- Séparation de l'espace des états en 2 sous-espaces E_+ et E_- .

$$\begin{aligned} E_+ &: \{ |+\rangle_x \otimes |n\rangle, n=0,1,2,\dots \} \\ E_- &: \{ |-\rangle_x \otimes |n\rangle, n=0,1,2,\dots \} \end{aligned} \quad (IV-12)$$

$| \pm \rangle_x$ états propres de J_x : $J_x | \pm \rangle_x = \pm \frac{1}{2} | \pm \rangle_x$ (IV-13)

- E_+ et E_- sont séparément invariants sous l'effet de H'_0 .

Dans E_+ , H'_0 devient $\omega a^\dagger a + \frac{\lambda}{2}(a + a^\dagger)$, c.-à-d l'hamiltonien d'un oscillateur harmonique déplacé

Dans E_- , H'_0 devient $\omega a^\dagger a - \frac{\lambda}{2}(a + a^\dagger)$, c.-à-d l'hamiltonien d'un oscillateur harmonique déplacé de la même quantité mais dans l'autre sens.

Ces 2 problèmes sont solubles. On en déduit les états propres et valeurs propres de H'_0 . Les états propres se déduisent de $|+\rangle_x |n\rangle$ et $|-\rangle_x |n\rangle$ par des translations respectivement

définies par $e^{-\frac{\lambda}{2\omega}(a^\dagger - a)}$ et $e^{\frac{\lambda}{2\omega}(a^\dagger - a)}$. Ces états propres s'écrivent donc :

$$|+\rangle_x |\overline{n}_+\rangle = |+\rangle_x e^{-\frac{\lambda}{2\omega}(a^\dagger - a)} |n\rangle \quad (IV-14)$$

$$|-\rangle_x |\overline{n}_-\rangle = |-\rangle_x e^{\frac{\lambda}{2\omega}(a^\dagger - a)} |n\rangle \quad (IV-15)$$

Les valeurs propres associés à (IV-14) et (IV-15) étant toutes deux égales à $(n + \frac{1}{2})\omega - \frac{\lambda^2}{4\omega}$ (IV-16)

- Les états $|\overline{n}_+\rangle$ et $|\overline{m}_-\rangle$ ne sont pas orthogonaux même si $n \neq m$ car ils correspondent à des états $|n\rangle$ et $|m\rangle$ d'un oscillateur déplacés dans des sens différents

$$\langle \overline{n}_+ | \overline{m}_- \rangle = \langle n | e^{\frac{\lambda}{\omega}(a^\dagger - a)} | m \rangle \quad (IV-17)$$

En développant l'exponentielle en puissances de $\frac{\lambda}{\omega}$ (après avoir appliqué la formule de Glauber), on peut calculer le produit scalaire précédent sous forme d'un développement en série entière de $\frac{\lambda}{\omega}$. On retrouve alors (en utilisant la formule IV-5) le développement en série d'une fonction de Bessel.

$$\langle \overline{n}_+ | \overline{m}_- \rangle = J_{n-m} \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) \quad (IV-18)$$

(Voir N. Polonsky : Thèse de 3^e cycle Paris 1966

N. Polonsky et C. Cohen-Tannoudji J. Phys. (1965), 26, 409)

(ii) Pente des niveaux en champ nul. Facteur g de l'atome habillé

- Pour $\omega_0 \ll \omega$, on traite l'hamiltonien Zeeman $\omega_0 J_z$ comme une perturbation par rapport à H'_0 donné en IV-11.
- Les états propres de H'_0 se groupent en multiplicités dégénérées de dimension 2, sous-tendues par $|+\rangle_x |n_+\rangle$ et $|-\rangle_x |n_-\rangle$, et séparés les unes des autres par ω .

Il faut donc diagonaliser la matrice 2×2 représentant $\omega_0 J_z$ dans cette multiplicité, matrice qui s'écrit compte tenu de (IV-18)

$$\frac{\omega_0}{2} \begin{pmatrix} 0 & \langle n_+ | n_- \rangle \\ \langle n_- | n_+ \rangle & 0 \end{pmatrix} = \frac{\omega_0}{2} J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \quad (IV-19)$$

et dont les valeurs propres sont $\pm \frac{\omega_0}{2} J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right)$

- On voit donc que le facteur g_h de l'atome habillé est relié au facteur g de l'atome libre par

$$g_h = g J_0 \left(\frac{\omega_1}{\omega} \right) \quad (IV-20)$$

Sous l'effet des absorptions et reémisions virtuelles de photons RF, le facteur g est donc considérablement modifié: il peut s'annuler et changer de signe (C. Cohen-Tannoudji et S. Haroche C.R. (1966), 262, 268)

④ lien avec les transitions à plusieurs quanta et les résonances de cohérence.

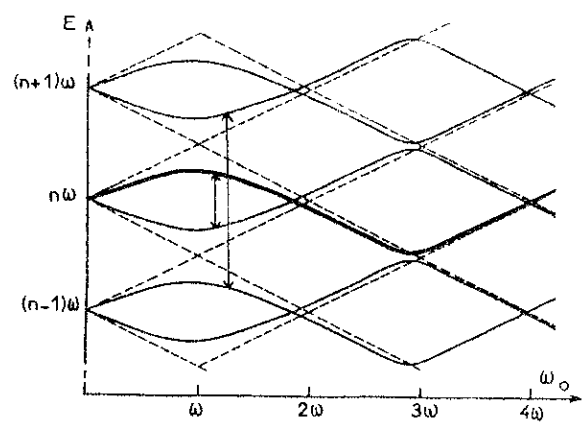


Fig 10. Diagramme d'énergie de l'atome habillé par des photons RF de polarisation σ (Traits pointillés: niveaux non perturbés)

On voit les anticroisements $\omega_0 = \omega$ et $\omega_0 = 3\omega$ correspondant à la résonance magnétique ordinaire et à la transition à 3 quanta.

On voit aussi les croisements $\omega_0 = 0$, $\omega_0 = 2\omega$ et $\omega_0 = 4\omega$ correspondant à des résonances de cohérence.

Quand $\omega_1 \nearrow$, tous les croisements et anticroisements se déplacent vers la gauche. La distance entre les 2 sommets des hyperboles aux anticroisements augmente.

On peut, pour chaque valeur de ω_0 (et pour une valeur donnée de ω_1) mesurer les fréquences de Bohr de l'atome habillé (flèches verticales), grâce à un 2^e champ sonde ou un pompage transverse en lumière modulée

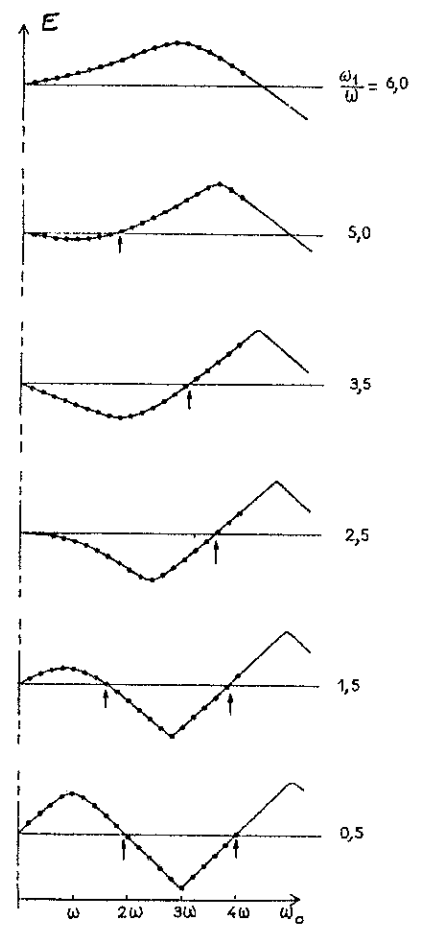


Fig. 11

Fig 11 : A partir des mesures des fréquences de Bohr associés aux flèches de la fig. 10, on peut, pour une valeur donnée de ω_1 , déterminer expérimentalement la variation avec ω_0 de l'énergie d'un niveau perturbé de l'atome habillé, celui représenté en traits renforcés sur la fig 10.

La déformation de ce niveau d'énergie quand ω_1 croît est représentée sur la fig 11 pour des valeurs croissantes de ω_1/ω_0 (points expérimentaux représentés par des points). Les déformations se comprennent très bien à partir du déplacement des résonances à plusieurs quanta et des résonances de cohérence (les flèches verticales de la fig 11 représentent les positions des résonances de cohérence $\omega_0 = 2\omega_1$ et $\omega_0 = 4\omega_1$ dont on voit clairement le déplacement vers la gauche quand $\omega_1 \uparrow$).

On voit aussi clairement que la pente en $\omega_0 = 0$, c.-à-d. le facteur g_h de l'atome habillé, décroît, s'annule (quand la résonance de cohérence initialement en $\omega_0 = 2\omega_1$ pour $\omega_1 \ll \omega_0$ est arrivée en $\omega_0 = 0$), change de ~~signe~~ signe, s'annule de nouveau (quand la résonance de cohérence $\omega_0 = 4\omega_1$ arrive à son tour en $\omega_0 = 0$) et ainsi de suite ... ce qui permet de bien comprendre la variation oscillante en $J_0(\frac{\omega_1}{\omega_0})$ de g_h .

En fait, les traits pleins de la fig. 11 représentent les courbes théoriques obtenues en diagonalisant par ordinateur l'hamiltonien de l'atome habillé sur une base tronquée comportant un nombre suffisant d'états non perturbés de part et d'autre de $|1, n\rangle$.

(C. Cohen-Tannoudji, C. Landre', J. Dupont-Roc et S. Haroche C.R (1970), 270, 73. C. Landre' thèse 3^e cycle, Paris 1970)

5) Quelques résultats expérimentaux

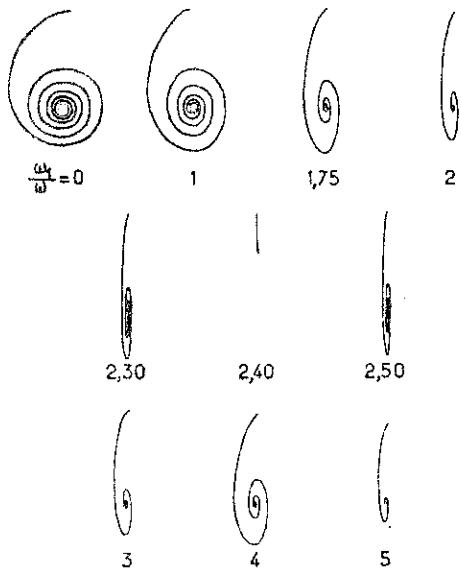


Fig 12 : Précession de Larmor d'atomes de 199 Hq dans le plan xOy perpendiculaire à la direction Oz du champ statique \vec{B}_0 , le champ RF $\vec{B}_1 \cos \omega t$ étant appliqué le long de Ox .

Les composantes $\langle J_x \rangle$ et $\langle J_y \rangle$ sont détectées au moyen de 2 faisceaux lumineux σ^+ se propageant le long de Ox et Oy .

Pour $\omega_1 = 0$, la précession est circulaire (l'amortissement est dû à la relaxation). Dès que ω_1 est $\neq 0$, le nombre de tours pendant le temps de relaxation diminue (g_h diminue) et la précession n'est plus circulaire mais elliptique.

La précession disparaît pour $\omega_1/\omega_0 = 2.4$ (1^{er} zéro de J_0)

(C. Landre', C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, S. Haroche J. Phys (1970), 31, 971)

Fig 12

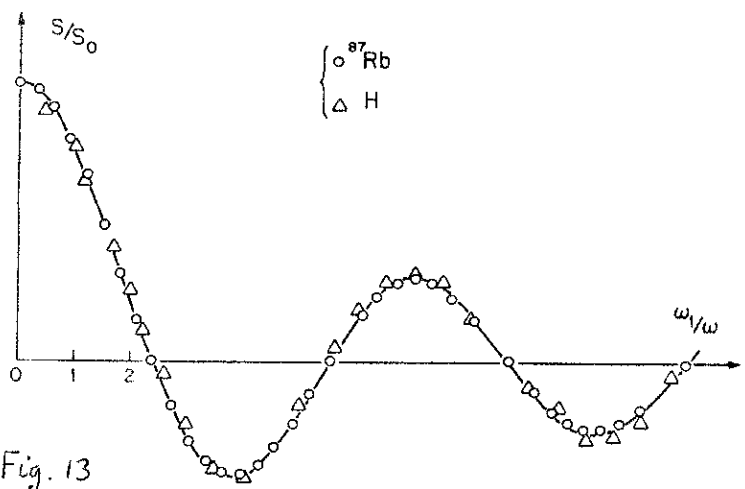


Fig. 13

Fig 13. Ecart des raies du Spectre Zeeman hyperfin d'atomes ^{87}Rb et H traités par des photons RF σ (utilisation d'un maser H pour H, et d'atomes de ^{87}Rb pompés optiquement pour ^{87}Rb)
 Vérification de la loi en $J_0(\omega/\omega_0)$ (courbe en traits pleins de la fig. 13)
 (S. Haroche, C. Cohen-Tannoudji, C. Audouin et J.P. Schermann Phys. Rev. Lett. (1970), 24, 861)

F. Conclusions : Avantages de l'approche atome traité

- Existence d'un hamiltonien indépendant du temps.
 Généralisation à des polarisations quelconques de la R.F.
 des avantages du référentiel tournant de la théorie classique.
- Interprétation globale et synthétique des différents effets résonnants de la spectroscopie hertzienne.
 Sur des figures comme la fig 10, on voit d'un seul coup la résonance ordinaire et les résonances à plusieurs quanta, la résonance de cohérence, l'effet Autler-Townes...
- Interprétation et calcul précis des effets de saturation.
 Les positions des résonance sont reliés de manière précise à des caractéristiques géométriques des diagrammes d'énergie (points où la tangente est horizontale, croisements)
 Approche simple pour le calcul des termes d'ordre supérieur sans les déplacements radiatifs
- Compréhension qualitative des phénomènes dans des domaines où aucun calcul perturbatif n'est possible
 Par exemple, on peut très bien comprendre qualitativement les déformations des diagrammes d'énergie de la fig 11.
- Interprétation corpusculaire des diverses résonances en termes d'émission et d'absorption réelles ou virtuelles de photons par l'atome.
 Lien entre la variation "stimulée" du facteur g (stimulée parce que produite par des photons incidents) et les effets "spontanés" de renormalisation de l'électrodynamique quantique (anomalie $g-2$ de l'électron). Problème intéressant : pourquoi g diminue-t-il pour un atome neutre interagissant avec des photons incidents non résonnants alors que g augmente pour un électron libre couplé aux fluctuations du vide ?

Liens entre l'approche entièrement quantique et la théorie des perturbations dépendant du temps.

- But de ce § : - Présenter un certain nombre d'approches du problème reposant sur une description classique du champ électromagnétique, les unes basées sur une résolution itérative des équations d'évolution (§A), les autres sur une résolution par fractions continues (§B).
- Etablir le lien étroit existant entre l'approche entièrement quantique (atome habillé) et des méthodes de résolution exacte de l'équation de Schrödinger correspondant à un hamiltonien dépendant du temps de manière périodique (états quasi-périodiques, quasi-énergies ...)
 - Discuter des avantages et inconvénients respectifs de ces diverses méthodes.

A. Résolution itérative des "équations de Bloch" du problème.

Pour un exposé plus détaillé de cette approche, voir la ref A2 (donnée à la fin du § A). Nous insisterons plutôt ici sur les avantages et inconvénients de cette approche.

① les "équations de Bloch" d'un système à 2 niveaux interagissant avec une onde monochromatique.

- Représentation du spin fictif.

\vec{M} : aimantation globale de l'ensemble des spins fictifs, reliée à l'opérateur densité ρ par

$$M_z \sim (\rho_{++} - \rho_{--}) \quad M_x \sim (\rho_{+-} + \rho_{-+}) \quad M_y = i(\rho_{-+} - \rho_{+-}) \quad (V-1)$$

- Introduction phénoménologique de constantes d'amortissement des composantes de \vec{M} pour décrire les phénomènes dissipatifs : Temps de relaxation T_R . (possibilité de 2 Temps de relaxation différents pour les composantes longitudinale et transversales de \vec{M})

- Equations de Bloch

$$\frac{d}{dt} \vec{M}(t) = n \vec{\mu}_0 - \frac{1}{T_R} \vec{M}(t) + \gamma \vec{M}(t) \times \vec{B}(t) \quad (V-2)$$

$$\vec{B}(t) = B_0 \vec{e}_z + B_1 \cos \omega t \vec{e}_x \quad (V-3)$$

γ : rapport gyromagnétique

$n \vec{\mu}_0$: terme source (n spins fictifs préparés par unité de temps avec l'aimantation élémentaire $\vec{\mu}_0$)

- 2 possibilités de termes source.

(i) $\vec{\mu}_0 = \mu_0 \vec{e}_z$ pompage longitudinal (ou facteur de Boltzmann dans le champ $B_0 \parallel \vec{e}_z$)

(ii) $\vec{\mu}_0 = \mu_0 \vec{e}_x$ pompage transversal (préparation des atomes dans une superposition cohérente des 2 états)

- Remarques

(i) Si l'on fait r.w.2. (ou si l'on a un vrai champ tournant), (V-2) est exactement soluble

(ii) Possibilité de situations plus compliquées (3 niveaux, spins $J > 1/2$...)

② Développement en série de Fourier de \vec{M}

- Comme $\vec{B}(t)$ est périodique, l'équation (B-2) admet une solution périodique développable en série de Fourier :

$$\begin{cases} M_z = \sum_{p=-\infty}^{+\infty} {}_p M_z e^{ip\omega t} \\ M_{\pm} = M_x \pm iM_y = \sum_p {}_p M_{\pm} e^{ip\omega t} \end{cases} \quad (V-4)$$

- En reportant (V-4) dans (V-2), on obtient en posant $\omega_0 = -\gamma B_0$,

$$\begin{cases} \left(ip\omega + \frac{1}{T_R} \right) {}_p M_z = n\mu_0 \delta_{p0} + i \frac{\omega_1}{4} \left[{}_{p+1} M_- + {}_{p-1} M_- - {}_{p+1} M_+ - {}_{p-1} M_+ \right] \\ \left[i(p\omega \mp \omega_0) + \frac{1}{T_R} \right] {}_p M_{\pm} = \mp i \frac{\omega_1}{2} \left[{}_{p+1} M_z + {}_{p-1} M_z \right] \end{cases} \quad (V-5)$$

On a supposé le pompage longitudinal

③ Développement en puissances de ω_1

- Chaque composante de Fourier de M_z ou M_{\pm} peut être développée en puissances de ω_1 . Par exemple :

$${}_p M_z = {}_p^{(0)} M_z + {}_p^{(1)} M_z \omega_1 + {}_p^{(2)} M_z \omega_1^2 + \dots \quad (V-6)$$

- En reportant (V-6) (et les développements analogues pour ${}_p M_{\pm}$) dans (V-5) on obtient :

$$\begin{cases} \left(ip\omega + \frac{1}{T_R} \right) {}_p^{(n)} M_z = \frac{i}{4} \left[{}_{p+1}^{(n-1)} M_- + {}_{p-1}^{(n-1)} M_- - {}_{p+1}^{(n-1)} M_+ - {}_{p-1}^{(n-1)} M_+ \right] + n\mu_0 \delta_{p0} \delta_{n0} \\ \left[i(p\omega \mp \omega_0) + \frac{1}{T_R} \right] {}_p^{(n)} M_{\pm} = \mp \frac{i}{2} \left[{}_{p+1}^{(n-1)} M_z + {}_{p-1}^{(n-1)} M_z \right] \end{cases} \quad (V-7)$$

- La solution s'obtient alors de proche en proche.

$$\begin{cases} \boxed{n=0} \\ \begin{cases} {}_0^{(0)} M_z = n\mu_0 T_R \\ {}_p^{(0)} M_z = 0 \text{ pour } p \neq 0 \end{cases} \end{cases} \quad \begin{cases} {}_p^{(0)} M_{\pm} = 0 \text{ pour tout } p \end{cases} \quad (V-8)$$

$$\begin{cases} \boxed{n \neq 0} \\ \begin{cases} {}_p^{(n)} M_z = \frac{i}{4 \left(ip\omega + \frac{1}{T_R} \right)} \left[{}_{p+1}^{(n-1)} M_- + {}_{p-1}^{(n-1)} M_- - {}_{p+1}^{(n-1)} M_+ - {}_{p-1}^{(n-1)} M_+ \right] \\ {}_p^{(n)} M_{\pm} = \mp \frac{i}{2 \left[i(p\omega \mp \omega_0) + \frac{1}{T_R} \right]} \left[{}_{p+1}^{(n-1)} M_z + {}_{p-1}^{(n-1)} M_z \right] \end{cases} \end{cases} \quad (V-9)$$

④ Structure en "arbre" de la solution

(a) Pompage longitudinal

Seul ${}_0^{(0)} M_z$ est $\neq 0$ à l'ordre 0. De (V-9), on voit en à l'ordre 1 on obtient ${}_{\pm 1}^{(1)} M_{\pm}$, puis à l'ordre 2 ${}_0^{(2)} M_z$ et ${}_{\pm 2}^{(2)} M_z$ et ainsi de suite ...

Voir tableau I

(b) Pompage transversal

Le terme source $n\mu_0 S p_0 \delta n_0$ apparaît maintenant dans la 2^{ème} équation (V-7) de sorte que seul ${}^{(0)}M_{\pm}$ est $\neq 0$ à l'ordre 0 puis ${}^{(1)}M_{\pm}$ à l'ordre 1, ${}^{(2)}M_{\pm}$ et ${}^{(2)}M_{\pm}$ à l'ordre 2 et ainsi de suite. Voir tableau II

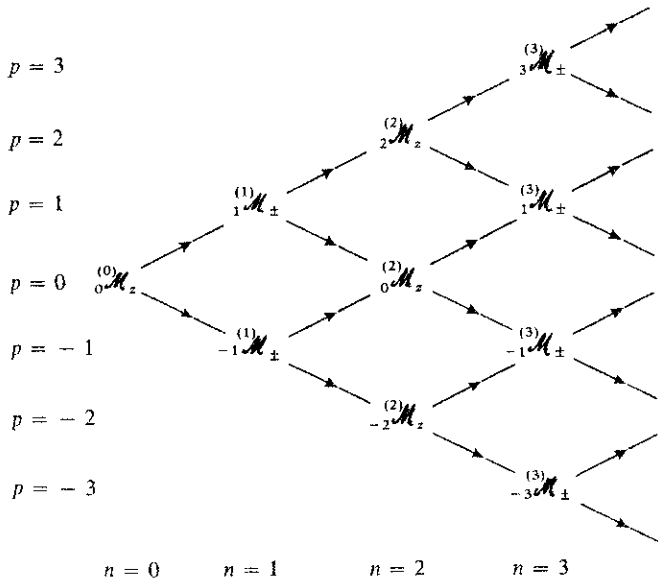


Tableau I

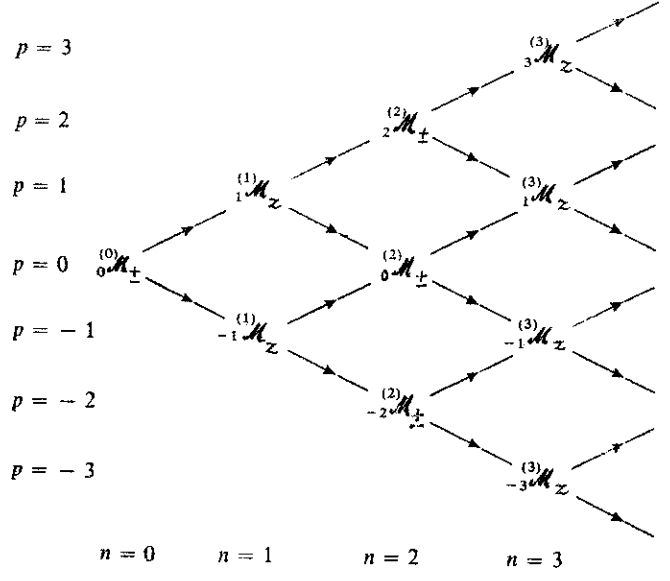


Tableau II

5) Discussion physique.

(a) Pompage longitudinal (voir discussion plus détaillée dans la réf. A2)

- Ordre 0 : différence de population initiale (en l'absence d'onde e.m.)
- Ordre 1 : dipôle induit - Susceptibilité linéaire
- Ordre 2 ${}^{(2)}M_z$: diminution de la différence de population due à l'absorption et l'émission induite.
- ${}^{(2)}M_{\pm}$: génération d'harmonique 2
- Ordre 3 ${}^{(3)}M_{\pm}$: saturation de la susceptibilité linéaire
Susceptibilité non linéaire
- ${}^{(3)}M_{\pm}$: Harmonique 3. Résonne en $\omega_0 = 3\omega$
Transitions à 3 quanta (la variation correspondante de la différence de population se manifeste sur ${}^{(6)}M_z$)

(b) Pompage transversal (voir discussion plus détaillée dans la réf. A3)

- Ordre 0 : ${}^{(0)}M_{\pm}$: aimantation transversale résonnante en $\omega_0 = 0$
Effet Hanle
- Ordre 1 ${}^{(1)}M_z$: Modulation à ω de la différence de population
- Ordre 2 ${}^{(2)}M_{\pm}$: Modification de l'effet Hanle
- ${}^{(2)}M_{\pm}$: Aimantation transversale résonnante en $\omega_0 = 2\omega$
Résonance de cohérence $\omega_0 = 2\omega$

On retrouve ainsi les diverses résonances (transitions à plusieurs quanta et résonances de cohérence) étudiées plus haut.

⑥ Comment apparaissent dans ce point de vue les déplacements et élargissements radiatifs ?

D'après la discussion présentée lors du survol de la Spectroscopie Hertzienne, une résonance apparaissant en $\omega_0 = p\omega$ subit en général un déplacement radiatif $\delta(\omega_1)$ dépendant de ω_1 , un élargissement radiatif $E(\omega_1)$ (en plus de la largeur intrinsèque $1/T_R$). Enfin son intensité $S(\omega_1)$ varie aussi avec ω_1 , de sorte que, mathématiquement, la résonance doit apparaître comme

$$\frac{S(\omega_1)}{\omega_0 - p\omega - \delta(\omega_1) + i\frac{1}{T_R} + iE(\omega_1)} \tag{V-10}$$

Où, dans la solution trouvée plus haut, les dénominateurs résonnants sont toujours de la forme $\frac{1}{-p\omega + \frac{i}{T_R}}$ ou $\frac{1}{\omega_0 - p\omega + \frac{i}{T_R}}$

En fait, pour $\omega_1 \ll \frac{1}{T_R}$, on peut développer (V-10) sous la forme :

$$\sum_{q=0}^{\infty} \frac{S(\omega_1) [\delta(\omega_1) - iE(\omega_1)]^q}{\left(\omega_0 - p\omega + \frac{i}{T_R}\right)^{q+1}} \tag{V-11}$$

Il faut en plus, dans (V-11), développer $S(\omega_1)$, $\delta(\omega_1)$, $E(\omega_1)$ en puissances de ω_1 .

Pour retrouver un comportement du type de (V-10), il faut donc resommer complètement la série de perturbations.

Si l'on se contente de calculer un petit nombre de termes après l'ordre le plus bas auquel la résonance apparaît, il est difficile de dégager sur ces termes la contribution au déplacement radiatif (développement de $\delta(\omega_1)$), celle de l'élargissement radiatif ($E(\omega_1)$) et de la saturation ($S(\omega_1)$).

⑦ Avantages et inconvénients de ce point de vue.

Avantages

- (i) Compréhension perturbative des phénomènes, faisant intervenir des nombres croissants d'interactions entre l'atome et l'onde e_{ω_1} . Possibilité de représentations diagrammatiques.
- (ii) Très grande souplesse d'emploi.
 - Introduction de l'effet Doppler
On écrit les équations de Bloch pour une classe de vitesses.
 - Interactions avec plusieurs ondes. Développement perturbatifs.
Interprétation des phénomènes en termes de processus faisant intervenir plusieurs interactions avec les diverses ondes (processus Raman, à 2 photons...)
(Voir référence A4 et références vis)
 - Interactions avec 2 ondes dont l'une est intense (pompe)

l'autre faible (sonde). Possibilité, grâce à r.w. 2., de calculer exactement l'effet de l'onde pompe, perturbativement l'effet de l'onde sonde (refs A1, A4, A5) (V-5)

- Possibilité d'introduire dans le calcul les variations spatiales de l'intensité lumineuse, la courbure des fronts d'onde ... (ref A6)

(iii) Très grande richesse d'applications

- Théorie du laser (calcul de la réponse atomique) ref A7
- Optique non linéaire - génération d'harmoniques ...
- Spectroscopie de saturation des systèmes à 2 et 3 niveaux ... (ref A4 et références in)

Inconvénients

Approche perturbative mal adaptée à l'étude des effets d'ordre supérieur, des élargissements et déplacements radiatifs. Pas de vision globale des divers effets.

Références

- A-1 N. Bloembergen and Y.R. Shen Phys. Rev. (1964), 133, 137
- A-2 C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloe Mécanique quantique ^{Tom II} Complément Bxiii p.1311
- A-3 C. Cohen-Tannoudji et S. Haroche C.R (1967), 264, 626
- A-4 I.M. Beterov and V.P. Chebotayev, Progress in Quantum Electronics Vol 3, Pergamon Press 1974
+ Articles T. Hänsch et P. Toschek cités dans cette référence
+ Articles M. Feld et A.J cités dans cette référence
- A-5 S. Haroche and F. Hartmann Phys Rev (1972), A6, 1280
- A-6 C.J. Bordé, J.L. Hall, C.V. Kunasz and D.G. Hummer Phys Rev (1976), A14, 236
- A-7 W.E. Lamb Jr Phys. Rev. (1964), 134, A 1429

B - Résolution des équations de Bloch par la méthode des "fractions continues"

① Idee générale (voir refs B2 et B.1)

Elle consiste à essayer de résoudre directement les équations de récurrence (V-5) pour les composantes de Fourier de \vec{M} , sans effectuer le développement en puissances de ω , (V-6). Nous allons voir qu'une telle résolution est possible et fournit des expressions explicites des composantes de Fourier de \vec{M} sous forme d'une fraction continue.

Auparavant nous allons ^{changer} partiellement les notations de § A (qui sont celles de la réf A2) pour nous adapter à celles de la référence B.2. Au lieu d'utiliser les composantes de \vec{M} , on utilise des éléments de la matrice densité ρ dont les développements de Fourier s'écrivent

$$\left\{ \begin{array}{l} \rho_{--} - \rho_{++} = \sum_P d_p e^{ip\omega t} \\ \rho_{+-} - \rho_{-+} = \sum_P s_p e^{ip\omega t} \\ \rho_{+-} + \rho_{-+} = \sum_P c_p e^{ip\omega t} \end{array} \right. \quad (V-12)$$

(Notons que nous conservons les notations ω et ω_0 pour la fréquence du laser et la fréquence atomique respectivement au lieu de ν et ω comme dans B.2.) (V-6)

Avec les notations (V-12), les équations (V-5) deviennent (avec 2 constantes d'amortissement différentes γ_1 et γ_2 pour les éléments diagonaux et non diagonaux de ρ):

$$\begin{cases} p\omega d_p = \frac{1}{2}\omega_1 (s_{p+1} + s_{p-1}) + i\gamma_1 d_p - i\lambda \delta_{p0} \\ p\omega s_p = \omega_0 c_p + \frac{1}{2}\omega_1 (d_{p+1} + d_{p-1}) + i\gamma_2 s_p \\ p\omega c_p = \omega_0 s_p + i\gamma_2 c_p \end{cases} \quad (V-13)$$

(On a appelé λ le terme source n_{p0} de V-5). Si l'on élimine c_p entre les 2 dernières équations (V-13), on obtient :

$$\begin{cases} s_p = \frac{i}{2} \left[\frac{1}{\gamma_2 + i[p\omega - \omega_0]} + \frac{1}{\gamma_2 + i[p\omega + \omega_0]} \right] \frac{\omega_1}{2} (d_{p+1} + d_{p-1}) \end{cases} \quad (V-14)$$

$$\begin{cases} d_p = i \left[\frac{1}{\gamma_1 + ip\omega} \right] \frac{\omega_1}{2} (s_{p+1} + s_{p-1}) + \frac{\lambda}{\gamma_1} \delta_{p0} \end{cases} \quad (V-15)$$

que l'on peut combiner sous forme d'une seule équation

$$\boxed{x_p = i \frac{1}{2} \omega_1 D(p) [x_{p+1} + x_{p-1}] + \delta_{p0}} \quad (V-16)$$

après avoir posé

$$\begin{cases} x_p = d_p \gamma_1 / \lambda & p \text{ pair} \\ x_p = s_p \gamma_1 / \lambda & p \text{ impair} \end{cases} \quad (V-17)$$

$$\begin{cases} D(p) = \frac{1}{\gamma_1 + ip\omega} & p \text{ pair} \\ D(p) = \frac{1}{2} \left[\frac{1}{\gamma_2 + i(p\omega - \omega_0)} + \frac{1}{\gamma_2 + i(p\omega + \omega_0)} \right] & p \text{ impair} \end{cases} \quad (V-18)$$

② Résolution des équations de récurrence (voir aussi ref. B.1)

- Pour $p \neq 0$, l'équation (V-16) est une équation de récurrence "homogène" qui peut se récrire après division par x_p

$$1 = \frac{i\omega_1}{2} D(p) \left[\frac{x_{p+1}}{x_p} + \frac{x_{p-1}}{x_p} \right] \quad (V-19)$$

- Supposons d'abord $p \geq 1$. Si l'on pose

$$b_p = \frac{x_{p+1}}{x_p} \quad (V-20)$$

il vient

$$1 = \frac{i\omega_1}{2} D(p) \left[b_p + \frac{1}{b_{p-1}} \right] \quad (V-21)$$

d'où l'on tire

$$b_{p-1} = \frac{i\omega_1}{2} D(p) \left[1 - \frac{i\omega_1}{2} D(p) b_p \right]^{-1} \quad (V-22)$$

Dans (V-22), faisons $p=1, p=2, \dots$ On obtient

$$\begin{aligned} b_0 &= i \frac{\omega_1}{2} D(1) [1 - i \frac{\omega_1}{2} D(1) b_1] \\ b_1 &= i \frac{\omega_1}{2} D(2) [1 - i \frac{\omega_1}{2} D(2) b_2] \end{aligned} \quad (V-23)$$

On en déduit :

$$b_0 = \frac{x_1}{x_0} = \frac{s_1}{d_0} = i \frac{\frac{\omega_1}{2} D(1)}{1 + \frac{\frac{\omega_1^2}{4} D(1) D(2)}{1 + \frac{\frac{\omega_1^2}{4} D(2) D(3)}{1 + \dots}}} \quad (V-24)$$

- Supposons maintenant $p \leq -1$ et posons :

$$g_p = \frac{x_p}{x_{p+1}} \quad (V-25)$$

Il vient $g_p = i \frac{\omega_1}{2} D(p) [1 - i \frac{\omega_1}{2} D(p) g_{p-1}]^{-1} \quad (V-26)$

d'où l'on tire, après un calcul analogue au précédent :

$$g_{-1} = \frac{x_{-1}}{x_0} = \frac{s_{-1}}{d_0} = i \frac{\frac{\omega_1}{2} D(-1)}{1 + \frac{\frac{\omega_1^2}{4} D(-1) D(-2)}{1 + \frac{\frac{\omega_1^2}{4} D(-2) D(-3)}{1 + \dots}}} \quad (V-27)$$

- On voit sur (V-18) que

$$D(-p) = D(p)^* \quad (V-28)$$

ce qui, utilisé dans (V-24) et (V-27) montre que

$$g_{-1} = -b_0^* \quad (V-29)$$

Reprenons alors les définitions (V-20) et (V-25) qui donnent

$$\begin{cases} x_1 = b_0 x_0 \\ x_{-1} = g_{-1} x_0 = -b_0^* x_0 \end{cases} \quad (V-30)$$

On peut alors reporter (V-30) dans l'équation de récurrence (V-16) écrite pour $p=0$, ce qui donne une équation permettant de calculer x_0

$$x_0 = i \frac{\omega_1}{2} D(0) (b_0 - b_0^*) x_0 + 1 \quad (V-31)$$

- Utilisant l'expression (V-24) de b_0 et le fait que, d'après (V-18), $D(0) = \frac{1}{\gamma_1}$, on obtient

$$d_0 = x_0 \frac{\lambda}{\gamma_1} = \frac{\lambda}{\gamma_1} \frac{1}{1 + \frac{\omega_1^2}{2\gamma_1^2} \sum} \quad (V-32)$$

où \sum est donné par

$$\Sigma = \text{Re} \frac{\gamma_1 D(1)}{1 + \frac{\frac{\omega_1^2}{4} D(1) D(2)}{1 + \frac{\frac{\omega_1^2}{4} D(2) D(3)}{1 + \dots}}} \quad (V-33)$$

- On a ainsi déterminé d_0 . On en déduit immédiatement S_1 et S_{-1} à partir de (V-24) et (V-27).
 Pour calculer les coefficients de Fourier d'ordre plus élevé, il suffit d'utiliser un nombre suffisant de fois l'équation (V-19), on ce qui revient au même (V-22) ou (V-26). Par exemple, si l'on veut calculer S_3 , on écrit

$$S_3 = \frac{S_3}{d_2} \frac{d_2}{S_1} \frac{S_1}{d_0} d_0 = b_2 b_1 b_0 d_0 =$$

$$\left(\frac{i\omega_1}{2}\right)^3 \left(\frac{D(3)}{1 + \frac{\frac{\omega_1^2}{4} D(3) D(4)}{1 + \frac{\frac{\omega_1^2}{4} D(4) D(5)}{1 + \dots}}} \right) \left(\frac{D(2)}{1 + \frac{\frac{\omega_1^2}{4} D(2) D(3)}{1 + \frac{\frac{\omega_1^2}{4} D(3) D(4)}{1 + \dots}}} \right) \left(\frac{D(1)}{1 + \frac{\frac{\omega_1^2}{4} D(1) D(2)}{1 + \frac{\frac{\omega_1^2}{4} D(2) D(3)}{1 + \dots}}} \right) d_0 \quad (V-36)$$

On a ainsi résolu entièrement le problème.

- On a considéré uniquement le cas d'un pompage longitudinal. Des calculs tout à fait analogues peuvent être développés à propos du pompage transversal (voir ref B.4).

③ Exemple d'application : élargissement et déplacement radiatif de la résonance $\omega_0 = \omega$

- On voit sur (V-18) que, de toutes les quantités $D(p)$, seule $D(1)$ résonne en $\omega_0 = \omega$.
 Calculons une expression approchée de d_0 (aimantation statique longitudinale) en remplaçant dans (V-32) Σ par l'expression obtenue en négligeant dans (V-33) tous les termes ne contenant pas $D(1)$.

$$\Sigma \approx \text{Re} \frac{\gamma_1 D(1)}{1 + \frac{\omega_1^2}{4} D(1) D(2)} \quad (V-37)$$

- D'autre part, au voisinage de $\omega_0 = \omega$, on peut d'après (V-18) écrire :

$$D(1) \approx \frac{1}{2} \frac{1}{\delta_2 + i(\omega - \omega_0)} \quad D(2) \approx \frac{1}{2i\omega} \quad (V-38)$$

ce qui, reporté dans (V-37) donne :

$$\Sigma \approx \frac{1}{2} \frac{\gamma_1 \delta_2}{\delta_2^2 + \left[\omega - \omega_0 - \frac{\omega_1^2}{16\omega} \right]^2} \quad (V-39)$$

En reportant alors (V-39) dans (V-32), on voit que le dénominateur de l'expression donnant d_0 s'écrit :

$$\left[\omega - \omega_0 - \frac{\omega_1^2}{16\omega} \right]^2 + \gamma_2^2 + \frac{\omega_1^2 \gamma_2}{4\gamma_1} \quad (V-40)$$

ce qui montre clairement l'existence d'un déplacement radiatif en $\omega_1^2/16\omega$ (déplacement de Bloch-Siegert), et d'un élargissement radiatif (largeur en γ_2 pour $\omega_1 \ll \gamma_1, \gamma_2$ en $\frac{\omega_1}{2} \sqrt{\frac{\gamma_2}{\gamma_1}}$ pour $\omega_1 \gg \gamma_1, \gamma_2$).

- Des calculs analogues pourraient être faits pour les transitions à plusieurs photons et les résonances de cohérence ^(refs B.3 et B.4). En conservant un plus grand nombre de termes dans la fraction continue, c.-à-d. en l'arrêtant moins tôt, on améliore considérablement la précision.

④ Avantages et inconvénients de cette méthode.

- Très bien adaptée pour les calculs sur ordinateurs. Très rapidement convergente.
- Très bien adaptée au calcul des effets d'ordre supérieurs. En arrêtant la fraction continue à un certain stade, on obtient un produit de 2 polynômes beaucoup plus proche de la solution exacte qu'un développement en série entière.
- Méthode très générale, utile dans de nombreux cas. Voir par exemple, théorie non perturbative des lasers (ref B1)
- Par contre, interprétations physiques plus difficiles à dégager.

Références

B-1 S. Stenholm and W.E. Lamb Jr (1969) Phys. Rev 181, 618
 B-2 S. Stenholm (1972) J. Phys. B, 5, 878
 B-3 S. Stenholm (1972) J. Phys. B, 5, 890
 B-4 S. Stenholm and C.A. Aminoff (1973) J. Phys. B, 6, 2350

Liens entre l'approche entièrement quantique
et la théorie des perturbations dépendant du temps (suite)

C - Résolution, par la méthode de Floquet-Shirley, de l'équation de Schrödinger relative à un hamiltonien périodique dans le temps.

① Idee générale.

- On va essayer, dans ce § C, d'exploiter au maximum les symétries de l'hamiltonien, à savoir sa périodicité temporelle.
- On va chercher des solutions de l'équation de Schrödinger qui reflètent au mieux cette symétrie. Analogie avec les fonctions de Bloch, en Physique du Solide, dont la forme générale est déterminée par la périodicité spatiale de l'hamiltonien.
- En cherchant à préciser davantage ces solutions, on va montrer qu'on est conduit tout naturellement à diagonaliser une matrice infinie, l'hamiltonien de Floquet-Shirley, présentant des liens étroits avec l'hamiltonien de la théorie entièrement quantique (atome habillé).
- On négligera tout phénomène dissipatif et on travaillera directement sur le vecteur d'état (au lieu de l'opérateur densité).

② Notations.

- Atome à r niveaux orthonormés $|i\rangle$ ($i=1,2,\dots,r$)

$$\langle j|i\rangle = \delta_{ij} \quad (VI-1)$$

- Hamiltonien atomique H_0

$$H_0|i\rangle = E_i|i\rangle \quad (VI-2)$$

- Interaction avec l'onde incidente traitée classiquement.
 Hamiltonien d'interaction $V(t)$, périodique de période T

$$V(t) = V(t+T) \quad (VI-3)$$

- Soit $|\psi_i(t)\rangle$ la solution de l'équation de Schrödinger, correspondant à la condition initiale $|\psi_i(0)\rangle = |i\rangle$. Comme l'opérateur d'évolution est unitaire (H hermitique), et conserve par suite la norme et le produit scalaire, on a :

$$\langle \psi_j(t) | \psi_i(t) \rangle = \delta_{ij} \quad \forall t \quad (VI-4)$$

- Toute superposition linéaire des $|\psi_i(t)\rangle$, avec des coefficients c_i indépendants de t , est, bien sûr, solution de l'équation de Schrödinger. Réciproquement, soit $|\psi(t)\rangle$ la solution la plus générale d'une telle équation. A $t=0$, on peut écrire $|\psi(0)\rangle = \sum_i c_i |i\rangle$, de sorte qu'on en déduit d'après la définition des $|\psi_i(t)\rangle$

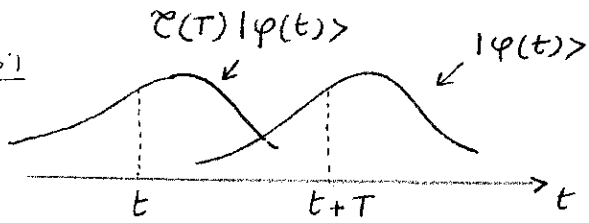
$$|\psi(t)\rangle = \sum_i c_i |\psi_i(t)\rangle \quad \text{avec } c_i \text{ indépendant de } t \quad (VI-5)$$

③ Existence d'une classe particulière de solutions de l'ép. de Schrödinger

(i) Théorème de Floquet

- Introduisons l'opérateur linéaire $\mathcal{U}(T)$, translation d'une quantité $-T$ sur l'axe des temps.

Fig 1



Chaque composante de $U(T)|\psi(t)\rangle$ a, au point t , la même valeur que la même composante de $|\psi(t)\rangle$ au point $t+T$ (cf fig. 1). On en déduit

$$U(T)|\psi(t)\rangle = |\psi(t+T)\rangle \tag{VI-6}$$

$U(T)$ conserve le produit scalaire et la norme. Donc

$$U(T) : \text{unitaire} \tag{VI-7}$$

- L'opérateur $i\frac{\partial}{\partial t}$ ne change visiblement pas dans la transformation $t \rightarrow t+T$. De même, comme $V(t)$ est périodique de période T , l'hamiltonien $H(t) = H_0 + V(t)$ commute avec $U(T)$. Il en est de même de l'opérateur $i\frac{\partial}{\partial t} - H(t)$. Donc si $|\psi(t)\rangle$ solution eq. Schr. $\Rightarrow U(T)|\psi(t)\rangle = |\psi(t+T)\rangle$ est aussi solution $\tag{VI-8}$

- Appliquons $U(T)$ à l'une des solutions $|\psi_i(t)\rangle$ ($i=1,2,\dots,r$) de l'eqn. de Schrödinger introduites à la fin du § 2. Le ket obtenu est, d'après VI-8, une autre solution, qui d'après VI-5 peut toujours être développée sur les $\{|\psi_j(t)\rangle\}$, les coefficients C_{ji} du développement étant, d'après (VI-5), indépendants de t .

$$C_{ji} = \langle \psi_j(t) | U(T) | \psi_i(t) \rangle \text{ indépendant de } t \tag{VI-9}$$

A partir de maintenant, nous supposons r fini. La matrice unitaire C_{ij} , de dimension r , est donc diagonalisable. Elle admet des valeurs propres, de module 1, qu'on peut donc écrire e^{-iq_e} (q_e : nombre réel), les vecteurs propres correspondants $|\bar{e}\rangle$ étant orthogonaux (propriété générale des matrices unitaires. Si une valeur propre est dégénérée, on peut toujours choisir des vecteurs orthogonaux dans le sous-espace propre). Soit $\langle i | \bar{e} \rangle$ la matrice unitaire permettant de diagonaliser C_{ij} . Si l'on introduit les r kets

$$|\bar{\psi}_e(t)\rangle = \sum_i \langle i | \bar{e} \rangle |\psi_i(t)\rangle \tag{VI-10}$$

on a
$$U(T) |\bar{\psi}_e(t)\rangle = e^{-iq_e} |\bar{\psi}_e(t)\rangle \tag{VI-11}$$

$$\langle \bar{\psi}_e(t) | \bar{\psi}_{e'}(t) \rangle = \delta_{ee'} \tag{VI-12}$$

Les coefficients $\langle i | \bar{e} \rangle$ obtenus en diagonalisant une matrice indépendante de t (cf VI-9) sont indépendants de t . Donc $|\bar{\psi}_e(t)\rangle$ superposition linéaire de $|\psi_i(t)\rangle$ avec des coefficients indépendants de t , est aussi solution de l'équation de Schrödinger.

Conclusion (théorème de Floquet) :

Si l'évolution d'un système à r niveaux (r fini) est régie par un hamiltonien périodique dans le temps, de période T , on peut trouver un ensemble orthonormal complet de r solutions de l'équation de Schrödinger, $|\bar{\psi}_e(t)\rangle$ ($e=1,2,\dots,r$) satisfaisant d'après (VI-11) et (VI-6) à

$$\mathcal{U}(T) |\bar{\Psi}_e(t)\rangle = |\bar{\Psi}_e(t+T)\rangle = e^{-iq_e T} |\bar{\Psi}_e(t)\rangle \quad (VI-13)$$

c-à-d qui sont simplement multipliés par un facteur de phase quand on les translate de $-T$.

Remarque : lien avec la théorie des groupes. Le groupe de symétrie du problème est le groupe des translations d'un multiple entier ≥ 0 de T dans le temps, groupe abélien, ayant donc des représentations irréductibles de dimension 1. $|\bar{\Psi}_e(t)\rangle$ est le vecteur de base de la représentation irréductible, de caractère e^{-iq_e} .

(ii) Etats quasi-périodiques - Quasi-énergies

- L'état $|\bar{\Psi}_e(t)\rangle$ est appelé "état quasi-périodique".

- Posons
$$|\bar{\Psi}_e(t)\rangle = e^{iq_e t/T} |\bar{\Psi}_e(t)\rangle \quad (VI-14)$$

On déduit aisément de (VI-13)

$$|\bar{\Psi}_e(t+T)\rangle = e^{iq_e t/T} e^{iq_e} e^{-iq_e} |\bar{\Psi}_e(t)\rangle = |\bar{\Psi}_e(t)\rangle \quad (VI-15)$$

Donc $|\bar{\Psi}_e(t)\rangle$ est périodique. On peut donc, d'après (VI-14), écrire

$$|\bar{\Psi}_e(t)\rangle = e^{-iq_e t/T} |\bar{\Psi}_e(t)\rangle \quad (VI-16-a)$$

avec
$$|\bar{\Psi}_e(t+T)\rangle = |\bar{\Psi}_e(t)\rangle \quad (VI-16-b)$$

- Posons
$$\bar{E}_e = \frac{q_e}{T} \quad (VI-17)$$

On peut réécrire (VI-16) sous la forme

$$|\bar{\Psi}_e(t)\rangle = e^{-i\bar{E}_e t} |\bar{\Psi}_e(t)\rangle \quad (VI-18)$$

\bar{E}_e est appelé "quasi-énergie" (Ce serait un vraie énergie, si au lieu d'être seulement périodique, $|\bar{\Psi}_e(t)\rangle$ était constant)

- Dans (VI-13), q_e n'est défini en \hbar à un multiple entier ≥ 0 de 2π . Donc \bar{E}_e n'est défini en \hbar à un multiple entier ≥ 0 de

$$\omega = \frac{2\pi}{T} \quad (VI-19)$$

Mathématiquement, on peut écrire, avec s entier ≥ 0 :

$$|\bar{\Psi}_e(t)\rangle = e^{-i(\bar{E}_e + s\omega)t} e^{is\omega t} |\bar{\Psi}_e(t)\rangle \quad (VI-20)$$

où le ket $e^{is\omega t} |\bar{\Psi}_e(t)\rangle$ est toujours périodique. Donc,

$$\begin{aligned} \text{si } \bar{a} \bar{E}_e \text{ correspond } |\bar{\Psi}_e(t)\rangle \\ \bar{a} \bar{E}_e + s\omega \text{ correspond } e^{is\omega t} |\bar{\Psi}_e(t)\rangle \end{aligned} \quad (VI-21)$$

- Analogie avec les fonctions de Bloch en Physique du Solide.

Dans un potentiel spatialement périodique, on peut toujours trouver une base de fonctions propres de H , de la forme

$$\Psi_{\vec{k}}(\vec{r}) = e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \varphi_{\vec{k}}(\vec{r}) \quad (VI-22)$$

où $\varphi_{\vec{k}}(\vec{r})$ a la périodicité du réseau (Analogie entre VI-16 et VI-22)

\vec{k} est une "quasi-impulsion" définie à un vecteur du réseau réciproque près (analogue avec la quasi-énergie \bar{E}_q définie à un multiple de ω près) |VI-4

(iii) Sens physique des états quasi-périodiques

- La valeur moyenne de toute observable physique G , ne dépendant pas explicitement du temps, dans un état quasi-périodique $|\bar{\Psi}_q(t)\rangle$ s'écrit d'après (VI-18):

$$\langle \bar{\Psi}_q(t) | G | \bar{\Psi}_q(t) \rangle = \langle \bar{\Psi}_q(t) | G | \bar{\Psi}_q(t) \rangle \quad (VI-23)$$

C'est donc, d'après (VI-16-b), une fonction périodique de t , de période T .

Remarque: La même propriété demeure valable pour l'opérateur vireux $\vec{v} = \frac{1}{m} (\vec{p} - e \vec{A}(t))$, car le potentiel vecteur $\vec{A}(t)$, bien que dépendant du temps, est périodique.

- $|\bar{\Psi}_q(t)\rangle$ peut donc être interprété comme un état décrivant un régime d'oscillation forcé de l'atome dans l'onde incidente, obtenue en branchant adiabatiquement cette perturbation.

④ Comment trouver les états quasi-périodiques et les quasi-énergies?

On ne sait pas en général calculer explicitement les solutions exactes $|\Psi_i(t)\rangle$ introduites à la fin du § 2, et par suite la matrice \mathcal{P}_{ji} définie en (VI-9), à partir de laquelle on peut introduire les \bar{E}_q et les $|\bar{\Psi}_q(t)\rangle$. On va plutôt, dans ce § 4, développer les $|\bar{\Psi}_q(t)\rangle$ sur états non perturbés $|i\rangle$, et reporter (VI-18) dans l'équation de Schrödinger pour déterminer les coefficients de ce développement.

(i) Développement en série de Fourier des états et du potentiel.

- Développons les états $|\bar{\Psi}_q(t)\rangle$ apparaissant dans (VI-18) sur la base $\{|i\rangle\}$

$$|\bar{\Psi}_q(t)\rangle = \sum_{i=1}^{\infty} c_{i\ell}(t) |i\rangle \quad (VI-24)$$

Comme $|\bar{\Psi}_q(t)\rangle$ est périodique, il en est de même des $c_{i\ell}(t)$ et on peut donc développer en série de Fourier

$$c_{i\ell}(t) = \sum_{p=-\infty}^{+\infty} c_{i\ell}^p e^{ip\omega t} \quad (VI-25)$$

Nous poserons

$$c_{i\ell}^p = (i, p | \bar{\ell}) \quad (VI-26)$$

de sorte que

$$|\bar{\Psi}_q(t)\rangle = \sum_i \sum_p (i, p | \bar{\ell}) e^{ip\omega t} |i\rangle \quad (VI-27)$$

- De même, on peut développer les éléments de matrice de la perturbation $V(t)$ en série de Fourier

$$\langle i | H_0 + V(t) | j \rangle = E_i \delta_{ij} + V_{ij}(t) \quad (VI-28)$$

$$V_{ij}(t) = \sum_r V_{ij}^r e^{ir\omega t} \quad (VI-29)$$

(ii) Hamiltonien de Floquet - Shirley

- Écrivons que l'état quasi-périodique (VI-18) est solution de l'équation de Schrödinger $(i\frac{\partial}{\partial t} - H(t))|\psi(t)\rangle = 0$. Pour cela reportons (VI-27) dans (VI-18), puis (VI-18) dans l'équation de Schrödinger, et égalons à 0 le terme en $e^{i p t}$ dans le coefficient de $|i\rangle$. On obtient :

$$(-p\omega + \bar{E}_0 - E_i)(i, p | \bar{e}) - \sum_j \sum_r V_{ij}^r (j, p-r | \bar{e}) = 0 \quad (VI-30)$$

- Introduisons un nouvel espace des états abstrait, où les kets de base $|i, p\rangle$ seraient repérés par 2 nombres quantiques: $i=1, 2, \dots, r$ (nombre quantique atomique), p entier ≥ 0 . Considérons des opérateurs de cet espace définis par

$$\begin{cases} \langle i, p | \mathcal{H}_A | j, q \rangle = \delta_{ij} \delta_{pq} E_i \\ \langle i, p | \mathcal{H}_R | j, q \rangle = \delta_{ij} \delta_{pq} p\omega \\ \langle i, p | \mathcal{V} | j, q \rangle = V_{ij}^{p-q} \end{cases} \quad (VI-31)$$

D'autre part, réinterprétons le coefficient $\langle i, p | \bar{e} \rangle$ introduit en (VI-26) comme la composante sur $\langle i, p |$ d'un certain ket $|\bar{e}\rangle$

$$\langle i, p | \bar{e} \rangle = \langle i, p | \bar{e} \rangle \quad (VI-32)$$

L'équation (VI-30) peut alors s'interpréter comme la projection sur $\langle i, p |$ de l'équation aux valeurs propres

$$(\mathcal{H}_A + \mathcal{H}_R + \mathcal{V})|\bar{e}\rangle = \bar{E}_0 |\bar{e}\rangle \quad (VI-33)$$

L'hamiltonien $\mathcal{H}_A + \mathcal{H}_R + \mathcal{V}$, représenté dans la base $\{|i, p\rangle\}$ par une matrice infinie, est l'hamiltonien de Floquet-Shirley.

- Si l'on a trouvé un vecteur propre $|\bar{e}\rangle$ de $\mathcal{H} = \mathcal{H}_A + \mathcal{H}_R + \mathcal{V}$, de valeur propre \bar{E}_0 , il est facile de voir, d'après les propriétés des éléments de matrice (VI-31), que l'on a du même coup une infinité d'autres vecteurs propres $|\bar{e}_s\rangle$, de valeur propre $\bar{E}_0 + s\omega$ (s entier ≥ 0), $|\bar{e}_s\rangle$ étant défini à partir de $|\bar{e}\rangle$ par une "translation" du nombre quantique p

$$\langle i, p+s | \bar{e}_s \rangle = \langle i, p | \bar{e} \rangle \quad (VI-34)$$

Cette propriété ne fait que traduire la propriété (VI-21) des états quasi-périodiques.

- Bien que l'hamiltonien de Floquet-Shirley soit représenté par une matrice infinie, il est facile de voir que dans une "zone de Brillouin" de largeur ω sur l'axe des énergies, il y a seulement r valeurs propres, toutes les autres valeurs propres s'en déduisant par des translations $s\omega$ (s entier ≥ 0)

- Cas particulier d'un système à 2 niveaux et d'une perturbation sinusoïdale. On utilise la représentation du spin fictif.

L'indice i prend 2 valeurs $+, -$: $|+\rangle, |-\rangle$

$$H_0 = \omega_0 J_3 \quad E_+ = \frac{\omega_0}{2} \quad E_- = -\frac{\omega_0}{2} \quad (VI-35)$$

$$V(t) = 2\omega_1 J_x \cos \omega t \quad (VI-36)$$

On a alors

$$\langle E, p | \mathcal{H}_A + \mathcal{H}_R | E', q \rangle = \delta_{EE'} \delta_{pq} \left(E \frac{\omega_0}{2} + p\omega \right) \quad (VI-37)$$

Quant à V , ses seuls éléments de matrice non nuls s'écrivent :

$$\langle +, p | V | -, q \rangle = \langle -, p | V | +, q \rangle = \frac{\omega_1}{2} \delta_{p, q \pm 1} \quad (VI-38)$$

(iii) Analogies et différences entre l'hamiltonien de Floquet-Shirley et l'hamiltonien de l'atome habillé.

- On se limite pour simplifier à un système à 2 niveaux et à une perturbation sinusoïdale (voir le § précédent).

- Revenons à l'hamiltonien de l'atome habillé

$$H = H_A + H_R + V = \omega_0 J_3 + \omega a^\dagger a + \lambda J_x (a + a^\dagger) \quad (VI-39)$$

Considérons les éléments de matrice de H dans la base $\{|E, n\rangle\}$ au voisinage d'une valeur \bar{n} de n très élevée et telle que :

$$\lambda \sqrt{\bar{n}} = \omega_1 \quad (VI-40)$$

On a :

$$\langle E, \bar{n} + p | H_A + H_R | E', \bar{n} + q \rangle = \delta_{EE'} \delta_{pq} \left(E \frac{\omega_0}{2} + \bar{n}\omega + p\omega \right) \quad (VI-41)$$

Si p et q sont 2 entiers ≥ 0 , très petits devant $\sqrt{\bar{n}}$, on peut remplacer $\sqrt{\bar{n} + p}$ par $\sqrt{\bar{n}}$, ce qui donne d'après (VI-40) :

$$\langle +, \bar{n} + p | V | -, \bar{n} + q \rangle = \langle -, \bar{n} + p | V | +, \bar{n} + q \rangle = \frac{\omega_1}{2} \delta_{p, q \pm 1} \quad (VI-42)$$

Tous les autres éléments de matrice de V étant nuls.

En comparant (VI-41) et (VI-42) à (VI-37) et (VI-38), on voit qu'au voisinage de $n = \bar{n}$, et à une translation globale $\bar{n}\omega$ des énergies près, la matrice représentant l'hamiltonien de l'atome habillé a la même structure que la matrice de Floquet-Shirley

- Par contre, si l'on considère des valeurs de n différant notablement de \bar{n} , ~~la structure de~~ la matrice représentant l'hamiltonien de l'atome habillé change de manière importante. Par exemple au voisinage de $n = 2\bar{n}$, ω_1 doit être remplacé par $\omega_1 \sqrt{2}$.

Donc, alors qu'à chaque valeur de ω , correspond un hamiltonien de Floquet-Shirley différent, l'hamiltonien de l'atome habillé renferme toutes les valeurs possibles de l'interaction. Au fur et à mesure que l'on monte vers des valeurs de plus en plus élevées

de n , les éléments non diagonaux de V augmentent comme \sqrt{n}

- Utilisons l'équivalence locale entre les 2 hamiltoniens pour préciser des notations sur l'atome habillé qui seront utiles au § D.

Dans le cas général d'un système à r niveaux, l'état perturbé $|\tilde{\ell}, n\rangle$ de l'atome habillé correspondant à l'état propre $|\bar{\ell}\rangle$ de l'hamiltonien de Floquet-Shirley (pour $\omega_1 = \lambda\sqrt{n}$), est défini par

- 1) la valeur propre de $|\tilde{\ell}, n\rangle$ est $\bar{E}_\ell + n\omega$
- 2) la composante de $|\tilde{\ell}, n\rangle$ sur l'état non perturbé $\langle i, n' |$ est égale au coefficient $\langle i, n'-n | \bar{\ell} \rangle$ de la théorie classique

$$\langle i, n' | \tilde{\ell}, n \rangle = \langle i, n'-n | \bar{\ell} \rangle \quad (VI-43)$$

5) Evolution dans le temps

- Utilisons les résultats précédents pour montrer comment on peut trouver la solution de l'équation de Schrödinger correspondant à l'état initial

$$|\Psi(t_0)\rangle = \sum_i \gamma_i |i\rangle \quad (VI-44)$$

- les $\{|\bar{\Psi}_\ell(t_0)\rangle\}$ formant une base à t_0

$$|\Psi(t_0)\rangle = \sum_i \sum_\ell \gamma_i \langle \bar{\Psi}_\ell(t_0) | i \rangle |\bar{\Psi}_\ell(t_0)\rangle \quad (VI-45)$$

les $\{|\bar{\Psi}_\ell(t)\rangle\}$ étant des solutions de l'équation de Schrödinger,

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_i \sum_\ell \gamma_i \langle \bar{\Psi}_\ell(t_0) | i \rangle |\bar{\Psi}_\ell(t)\rangle \quad (VI-46)$$

En utilisant (VI-18), (VI-27), on obtient

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_i \sum_\ell \sum_p \sum_q \sum_j \gamma_i e^{-ip\omega t_0} e^{i\bar{E}_\ell t_0} (\bar{\ell} | i, p) e^{-i\bar{E}_\ell t} e^{iq\omega t} (j, q | \bar{\ell}) |j\rangle \quad (VI-47)$$

c-à-d encore

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_{\substack{i, j \\ p, q}} |j\rangle \gamma_i e^{-ip\omega t_0} e^{-i\bar{E}_\ell(t-t_0)} e^{iq\omega t} (\bar{\ell} | i, p) (j, q | \bar{\ell}) \quad (VI-48)$$

La diagonalisation de l'hamiltonien de Floquet-Shirley, qui donne les \bar{E}_ℓ et les $(i, p | \bar{\ell})$ permet donc de résoudre complètement le problème de l'évolution dans le temps.

- Les fréquences de Bohr apparaissant dans les valeurs moyennes calculées à partir de (VI-48) sont :

$$s\omega + \bar{E}_\ell - \bar{E}_{\ell'} \quad s \text{ entier } \geq 0 \quad (VI-49)$$

En plus des fréquences $s\omega$ (pour $\ell = \ell'$) correspondant à un régime d'oscillation forcée, on voit apparaître les différences $\bar{E}_\ell - \bar{E}_{\ell'}$ entières quasi-énergies.

Références

J. H. SHIRLEY Phys. Rev (1965), 138, B 979 .
 Y. ZEL'DOVICH Soviet Physics JETP 24, 1006 (1967)
 Sov. Phys. Usp 16, 727 (1973)
 R. YOUNG, W. DEAL, N. KESTNER Molec. Phys 17, 369 (1969)
 H. SAMBE Phys. Rev. A7, 2203 (1973)

VII-1

Liens entre l'approche entièrement quantique et la
théorie des perturbations dépendant des temps (suite et fin)

D- Problème de l'équivalence entre les traitements utilisant une description classique ou quantique de l'onde incidente.

① Idee générale (on néglige tout phénomène dissipatif).

- Considérons d'abord les traitements utilisant une description classique. Si l'état initial de l'atome à t_0 est décrit par un vecteur $|\psi(t_0)\rangle$, il reste à tout instant ultérieur t décrit par un vecteur $|\psi(t)\rangle$ obtenu en résolvant l'équation de Schrödinger, (ou en utilisant l'équation VI-48 si l'on connaît les états quasi-énergétiques et les quasi-énergies).

- Dans les traitements utilisant une description quantique, on peut toujours prendre un état initial sous forme d'un produit

$$|\psi(t_0)\rangle = |\psi_A(t_0)\rangle \otimes |\psi_R(t_0)\rangle \quad (\text{VII-1})$$

d'un ket atomique par un ket de rayonnement. Comme les 2 systèmes interagissent, il apparaît des corrélations entre eux et en général, l'état du système global est, à un instant ultérieur t , un ket $|\psi(t)\rangle$ qui n'est plus un produit, de sorte que l'état de l'atome à l'instant t est en général un mélange statistique.

- Comment alors justifier les traitements classiques où l'état atomique reste à tout instant décrit par un ket $|\psi(t)\rangle$ (cas pour) satisfaisant à une équation de Schrödinger dépendant des temps ?

- Nous allons montrer dans le § 2 (voir réf. D1) qu'un tel résultat est valable quand l'état initial du champ $|\psi_R(t_0)\rangle$ est un état quasiclassique (état cohérent). La résolution de l'équation de Schrödinger du système global atome + photons (atome habillé) montre en effet que dans ce cas la factorisation

$$|\psi(t)\rangle = |\psi_A(t)\rangle \otimes |\psi_R(t)\rangle \quad (\text{VII-2})$$

demeure valable à une très bonne approximation à tout instant ultérieur. De plus, on montre aisément que $|\psi_A(t)\rangle$ obéit à une équation de Schrödinger dépendant des temps.

Dans le § 3 (voir réf. D2), nous reprendrons ensuite le problème par une méthode légèrement différente basée sur une transformation unitaire qui permet de ramener le problème, d'un atome interagissant avec des photons incidents dans un état cohérent à celui d'un atome dans le vide de photons interagissant avec une onde classique.

② Première approche du problème.

a) Exemple simple montrant l'apparition de corrélations entre l'atome et le rayonnement : état initial à nombre bien défini de photons.

- Considérons pour simplifier le cas d'un champ tournant. Le calcul de la page (III-1) montre alors que si à t_0 on part de l'état produit

$$|-, n+1\rangle = \sin \varphi |1, n\rangle + \cos \varphi |2, n\rangle \quad (\text{VII-3})$$

l'état à l'instant t est devenue :

$$|\Psi(t)\rangle = \sin \varphi e^{-i\bar{\omega}(t-t_0)/2} |1, n\rangle + \cos \varphi e^{i\bar{\omega}(t-t_0)/2} |2, n\rangle \quad (\text{VII-4})$$

Lorsqu'on redéveloppe (VII-4) sur les états non perturbés (cf II-33), on obtient une superposition linéaire de $|-, n+1\rangle$ et $|+, n\rangle$

$$|\Psi(t)\rangle = \lambda(t) |-, n+1\rangle + \mu(t) |+, n\rangle \quad (\text{VII-5})$$

(où $\lambda(t)$ et $\mu(t)$ sont entièrement calculables) qui ne peut visiblement pas se mettre sous forme d'un produit (sauf à certains instants où $\lambda(t)$ ou $\mu(t)$ s'annulent)

b) Cas où l'état initial du champ est quasiclassique

$$|\Psi_R(t_0)\rangle = \sum_n c_n e^{-in\omega t_0} |n\rangle \quad (\text{VII-6})$$

On a considéré un seul mode du champ excité. On néglige le couplage avec les autres modes qui sont vides. La courbe donnant la distribution de $|c_n|^2$ en fonction de n a son maximum en \bar{n} et une largeur $\Delta n \sim \sqrt{\bar{n}}$.

Nous supposons les c_n réels et positifs (pour un état cohérent $|\alpha\rangle$, $c_n = e^{-|\alpha|^2/2} \alpha^n / \sqrt{n!}$, ce qui revient à supposer α réel > 0). La valeur moyenne du champ électrique (proportionnel à $a + a^\dagger$) est donc en $\cos \omega t_0$.

D'après la propriété que nous venons de mentionner sur la distribution des $|c_n|^2$

$$p \ll \sqrt{\bar{n}} \implies c_n \approx c_{n+p} \quad (\text{VII-7})$$

- Si l'on part d'un état atomique initial (notations du § C) :

$$|\Psi_A(t_0)\rangle = \sum_i \gamma_i |i\rangle \quad (\text{VII-8})$$

l'état initial du système global s'écrit :

$$|\Psi(t_0)\rangle = |\Psi_A(t_0)\rangle \otimes |\Psi_R(t_0)\rangle = \sum_{i,n} \gamma_i c_n e^{-in\omega t_0} |i, n\rangle \quad (\text{VII-9})$$

- Pour avoir l'état du système global à l'instant t , nous utiliserons le formalisme de l'atome habillé. Supposons connus les états propres $|\tilde{\ell}, n\rangle$ de l'hamiltonien, de valeurs propres $\tilde{E}_\ell + n\omega$. A l'instant t , $|\Psi(t_0)\rangle$ devient :

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_{i,n} \sum_{\tilde{\ell}, n'} \gamma_i c_n \langle \tilde{\ell}, n' | i, n \rangle |\tilde{\ell}, n'\rangle e^{-i(\tilde{E}_\ell + n'\omega)(t-t_0)} e^{-in\omega t_0} \quad (\text{VII-10})$$

Redéveloppons les $|\tilde{\ell}, n'\rangle$ sur les états non perturbés :

$$|\tilde{\ell}, n'\rangle = \sum_{j, n''} |j, n''\rangle \langle j, n'' | \tilde{\ell}, n' \rangle \quad (\text{VII-11})$$

Il vient finalement :

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_{i,n} \sum_{\tilde{\ell}, n'} \sum_{j, n''} \gamma_i c_n \langle j, n'' | \tilde{\ell}, n' \rangle \langle \tilde{\ell}, n' | i, n \rangle |j, n''\rangle e^{-i(\tilde{E}_\ell + n'\omega)(t-t_0)} e^{-in\omega t_0} \quad (\text{VII-12})$$

Jusqu'ici, nous n'avons fait aucune approximation (à part celle de négliger le couplage avec les modes vides). Aucune factorisation ne semble évidente sur (VII-12).

- Utilisons maintenant le caractère quasi-clampé de la distribution des $|c_n|^2$.

Montrons d'abord que dans la sommation (VII-12), n'' ne peut pas beaucoup différer de n . Les coefficients du développement $\langle j, n'' | \tilde{l}, n' \rangle$ d'un état perturbé sur un état non perturbé ne sont différents de zéro que si $|n' - n''|$ n'est pas trop grand (de manière plus précise, on peut montrer que $|n' - n''|$ ne doit pas être trop grand devant ω_1/ω). Comme $\sqrt{n} \gg 1$, on en déduit :

$$\begin{aligned} \langle j, n'' | \tilde{l}, n' \rangle \neq 0 &\implies |n' - n''| \ll \sqrt{n} \\ \langle \tilde{l}, n' | i, n \rangle \neq 0 &\implies |n - n'| \ll \sqrt{n} \end{aligned} \tag{VII-13}$$

de sorte que l'on doit avoir également

$$|n - n''| \ll \sqrt{n} \tag{VII-13 bis}$$

pour que les termes correspondants de (VII-12) ne soient pas négligeables. Par suite, en utilisant (VII-7), on voit qu'on commet une erreur négligeable en remplaçant dans (VII-12) c_n par $c_{n''}$

$$c_n \rightarrow c_{n''} \tag{VII-14}$$

- Par ailleurs, d'après la périodicité locale du diagramme de l'atome habillé, le produit scalaire $\langle j, n'' | \tilde{l}, n' \rangle$ ne dépend que de la différence $n'' - n'$. Ce point apparaît d'ailleurs très clairement sur les formules (VI-43) qui permettent d'écrire

$$\begin{cases} \langle j, n'' | \tilde{l}, n' \rangle = \langle j, q = n'' - n' | \bar{l} \rangle \\ \langle \tilde{l}, n' | i, n \rangle = \langle \bar{l} | i, p = n - n' \rangle \end{cases} \tag{VII-15}$$

où les $\langle | \rangle$ sont les composantes de Fourier apparaissant dans la théorie de Floquet-Shirley (cf VI-26)

- Reportons (VII-14) et (VII-15) dans (VII-12). D'autre part, au lieu de sommer sur n, n', n'' , on peut sommer sur $n'', p = n - n', q = n'' - n'$. Il vient ainsi

$$|\Psi(t)\rangle \approx \sum_{\substack{i, j, l \\ n'', p, q}} \gamma_i c_{n''} e^{-in''\omega t} e^{in''\omega t} |j, n''\rangle \langle j, q | \bar{l} \rangle \langle \bar{l} | i, p \rangle e^{-i(\bar{E}_l + n'\omega)(t-t_0)} e^{-in''\omega t_0} \tag{VII-16}$$

que l'on peut écrire

$$|\Psi(t)\rangle = |\Psi_R(t)\rangle \otimes |\Psi_A(t)\rangle \tag{VII-17}$$

avec

$$|\Psi_R(t)\rangle = \sum_{n''} c_{n''} e^{-in''\omega t} |n\rangle \tag{VII-18}$$

$$|\Psi_A(t)\rangle = \sum_{\substack{i, j, l \\ p, q}} \gamma_i \langle j, q | \bar{l} \rangle \langle \bar{l} | i, p \rangle e^{-i\bar{E}_l(t-t_0)} e^{iq\omega t} e^{-ip\omega t_0} |j\rangle \tag{VII-19}$$

Conclusion

On a ainsi démontré 2 points :

- (i) $|\Psi(t)\rangle$ reste factorisé à tout instant t (cf VII-18), l'état du champ à l'instant t se déduisant de $|\Psi_R(t_0)\rangle$ par une évolution libre.
- (ii) En comparant (VII-19) à (VI-48), on voit que $|\Psi_A(t)\rangle$ est la solution de l'équation de Schrödinger classique correspondant à l'état initial $|\Psi_A(t_0)\rangle$, ce qui justifie entièrement le traitement classique.

Pour arriver à ces résultats, on a utilisé 2 propriétés

- (i) La très grande largeur $\Delta n = \sqrt{n}$ de la distribution quasi-classique, ce qui permet de remplacer dans (VII-12) C_n par C_n'' . Rappelons que pour un atome interagissant avec une onde se propageant librement dans l'espace, on sait (voir discussion page II-4) qu'on peut faire tendre n vers l'infini.
- (ii) On a négligé la variation de \sqrt{n} quand n varie de \sqrt{n} autour de \bar{n} (équivalence locale entre l'hamiltonien de l'atome habillé et l'hamiltonien de Floquet-Sturley utilisé pour écrire VII-15)

On sait d'après la discussion (page II-6 §6) que ceci revient à négliger les fluctuations du champ électrique dans un état cohérent de l'ordre des fluctuations ses vides dans le mode considéré. De plus, on a négligé la fluctuation du vide associée aux autres modes.

Donc, la factorisation (VII-18) et le traitement par équation de Schrödinger dépendant du temps ne sont finalement valables que si l'état initial du champ est quasi-classique et si l'on peut négliger l'émission spontanée.

③ Autre approche

a) Etat initial quantique correspondant à la meilleure description possible d'un paquet d'ondes classiques incident.

- Champ électrique correspondant à une onde plane progressive classique (Mode $\vec{k} \vec{E}$) :

$$i(\vec{u}_{kE}(\vec{r}) e^{-i\omega_k t} - \vec{u}_{kE}^*(\vec{r}) e^{i\omega_k t}) \quad (VII-20)$$

avec

$$\vec{u}_{kE}(\vec{r}) = \sqrt{\frac{\hbar \omega_k}{2\epsilon_0 L^3}} \vec{E} e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \quad (VII-21)$$

- Champ électrique correspondant à un paquet d'ondes obtenu en superposant linéairement de telles ondes planes

$$\vec{E}_{cl}(\vec{r}, t) = i \sum_{kE} \left[\vec{u}_{kE}(\vec{r}) \alpha_{kE}(t) - \vec{u}_{kE}^*(\vec{r}) \alpha_{kE}^*(t) \right] \quad (VII-22)$$

avec

$$\alpha_{kE}(t) = \alpha_{kE} e^{-i\omega_k t} \quad (VII-23)$$

- Opérateurs champ électrique quantique $\vec{E}(\vec{r})$ au point \vec{r} (voir cours 73-74 p. XII-4)

$$\vec{E}(\vec{r}) = i \sum_{kE} \left[\vec{u}_{kE}(\vec{r}) a_{kE} - \vec{u}_{kE}^*(\vec{r}) a_{kE}^+ \right] \quad (VII-24)$$

les a_{kE} et a_{kE}^+ étant des opérateurs d'annihilation et de création d'un photon kE

$$[a_{kE}, a_{k'E}^+] = \delta_{\vec{k}\vec{k}'} \delta_{EE'} \quad (VII-25)$$

- Etat du champ quantique correspondant le mieux au paquet d'ondes classique (VII-22) : Produit d'états cohérents de chaque mode correspondant au coefficient $\alpha_{kE}(t)$ figurant dans VII-22

$$|\Psi_R(t)\rangle = \prod_{kE} |\alpha_{kE}(t)\rangle = |\{\alpha_{kE}(t)\}\rangle \quad (VII-26)$$

Toutes les valeurs moyennes des opérateurs quantiques calculées dans $|\Psi_R(t)\rangle$ sont égales aux grandeurs classiques associées au paquet d'ondes classiques VII-22 (cf cours 74-75 p. III-2)

- Considérons un paquet d'onde du type de (VII-26) arrivant sur l'atome dans l'état $|\Psi_A\rangle$ situé au point \vec{R} (choisi comme origine des coordonnées : $\vec{R} = \vec{0}$)

Pour t suffisamment loins dans le passé, le paquet d'ondes n'est pas encore arrivé sur l'atome, de sorte que l'état du système global atome + champ e.m. est encore un produit :

$$|\Psi(t)\rangle \xrightarrow[t \rightarrow -\infty]{} |\Psi_A(t)\rangle \otimes |\Psi_R(t)\rangle = e^{-iH_A t} |\Psi_A\rangle \otimes |\{\alpha_{kE} e^{-i\omega_k t}\}\rangle \quad (VII-27)$$

H_A étant l'hamiltonien atomique.

A partir du moment où le paquet d'ondes arrive sur l'atome, la factorisation (VII-27) n'est bien sûr plus évidente.

b) Hamiltonien du système atome + champ quantique

$$H = H_A + H_R + V \quad (VII-28)$$

$$H_R = \sum_{kE} \omega_k a_{kE}^+ a_{kE} \quad (VII-29)$$

$$V = -\vec{D} \cdot \vec{E}(\vec{0}) = -i\vec{D} \cdot \sum_{kE} \left[\vec{u}_{kE}(\vec{0}) a_{kE} - \vec{u}_{kE}^*(\vec{0}) a_{kE}^+ \right] \quad (VII-30)$$

\vec{D} : dipôle atomique.

c) Rappel ou établissement de quelques formules utiles

- Formule de Glauber

Si A et B commutent avec $[A, B]$, on a :

$$e^{A+B} = e^A e^B e^{-\frac{1}{2}[A, B]} \quad (VII-31)$$

- Expression de l'état cohérent $|\alpha_{kE}(t)\rangle$ à partir du vide $|0_{kE}\rangle$

$$|\alpha_{kE}(t)\rangle = D(\alpha_{kE}(t)) |0_{kE}\rangle \quad (VII-32)$$

où
$$D(\alpha_{kE}(t)) = e^{[\alpha_{kE}(t) a_{kE}^+ - \alpha_{kE}^*(t) a_{kE}]} \quad (VII-33)$$

est un opérateur unitaire (opérateur de déplacement de Glauber) satisfaisant de plus aux relations suivantes

$$\begin{cases} D^\dagger(\alpha_{kE}(t)) a_{kE} D(\alpha_{kE}(t)) = a_{kE} + \alpha_{kE}(t) \\ D^\dagger(\alpha_{kE}(t)) a_{kE}^\dagger D(\alpha_{kE}(t)) = a_{kE}^\dagger + \alpha_{kE}^*(t) \end{cases} \quad (VII-34)$$

La démonstration de (VII-34) se fait en utilisant (VII-31) et la relation $[a, f(a^\dagger)] = \frac{df(a^\dagger)}{da^\dagger}$.

- Calcul de la dérivée de $D(\alpha_{kE}(t))$.

Si $\dot{A}(t)$ ne commute pas avec $A(t)$, on a $\frac{d}{dt} e^{A(t)} \neq \dot{A}(t) e^{A(t)}$.
 Donc $\frac{d}{dt} e^{(\alpha a^\dagger - \alpha^* a)} \neq (\dot{\alpha} a^\dagger - \dot{\alpha}^* a) e^{(\alpha a^\dagger - \alpha^* a)}$ (Pour simplifier les notations, on n'écrit pas k, E, t dans $\alpha_{kE}(t)$).

Pour calculer $\frac{d}{dt} D(\alpha)$, on utilise la formule de Glauber pour $D(\alpha)$

$$D(\alpha) = e^{\alpha a^\dagger} e^{-\alpha^* a} e^{-\frac{1}{2} \alpha^* \alpha} \quad (VII-35)$$

et on dérive chaque exponentielle

$$\frac{d}{dt} D(\alpha) = \dot{\alpha} a^\dagger D + D \cdot (-\dot{\alpha}^* a) + D \cdot \left(-\frac{\dot{\alpha} \alpha^* + \alpha \dot{\alpha}^*}{2} \right) \quad (VII-36)$$

On fait ensuite passer a^\dagger à droite de D dans le 1^{er} terme de (VII-36) grâce à (VII-34) :

$$\frac{d}{dt} D(\alpha) = D \cdot (\dot{\alpha} a^\dagger) + D \cdot (\dot{\alpha} \alpha^*) + D \cdot (-\dot{\alpha}^* a) + D \cdot \left(-\frac{\dot{\alpha} \alpha^* + \alpha \dot{\alpha}^*}{2} \right) \quad (VII-37)$$

En regroupant les 2^{es} et 4^{es} termes de (VII-37) et en utilisant le fait que, compte tenu de (VII-23)

$$\dot{\alpha} = -i\omega \alpha \quad \dot{\alpha}^* = i\omega \alpha^* \quad (VII-38)$$

on obtient

$$\frac{d}{dt} D(\alpha_{kE}(t)) = D(\alpha_{kE}(t)) \left[-i\omega_k \alpha_{kE}^{(t)} a_{kE}^\dagger - i\omega_k \alpha_{kE}^{*(t)} a_{kE} - i\omega_k \alpha_{kE}^{*(t)} \alpha_{kE}^{(t)} \right] \quad (VII-39)$$

- Notations commodes

$$D(\{\alpha_{kE}(t)\}) = \prod_{kE} D(\alpha_{kE}(t)) \quad (VII-40)$$

Comme les opérateurs de 2 modes différents commutent, on déduit de (VII-39)

$$\frac{d}{dt} D(\{\alpha_{kE}(t)\}) = -i D(\{\alpha_{kE}(t)\}) \sum_{kE} \omega_k \left[\alpha_{kE}^{(t)} a_{kE}^\dagger + \alpha_{kE}^{*(t)} a_{kE} + \alpha_{kE}^{*(t)} \alpha_{kE}^{(t)} \right] \quad (VII-41)$$

d) Transformation unitaire effectuée sur l'équation de Schrödinger.

- Effectuons sur le ket $|\psi(t)\rangle$ solutions de l'équation de Schrödinger du système global la transformation unitaire $D^\dagger(\{\alpha_{kE}(t)\})$.

$$|\tilde{\psi}(t)\rangle = D^\dagger(\{\alpha_{kE}(t)\}) |\psi(t)\rangle \quad (VII-42)$$

Comme on peut, d'après (VII-32), écrire (VII-27) sous la forme

$$|\psi(t)\rangle \xrightarrow{t \rightarrow -\infty} e^{-iH_A t} |\psi_A\rangle \otimes D(\{\alpha_{kE}(t)\}) |0\rangle_R \quad (VII-43)$$

où $|0\rangle_R$ est le vide de Fock, on voit que :

$$|\tilde{\psi}(t)\rangle \xrightarrow{t \rightarrow -\infty} e^{-iH_A t} |\psi_A\rangle \otimes |0\rangle_R \quad (VII-44)$$

Dans la nouvelle représentation, on est ramené à un problème où aucun photon incident n'arrive sur l'atome (quand $t \rightarrow -\infty$, on a le vide de Fock). Evidemment, l'évolution de $|\tilde{\psi}(t)\rangle$ n'est plus la même que celle de $|\psi(t)\rangle$.

- Equations d'évolution de $|\tilde{\psi}(t)\rangle$.

$$\begin{aligned} i \frac{d}{dt} |\tilde{\psi}(t)\rangle &= i \frac{d}{dt} [D^+ |\psi\rangle] = i \left(\frac{d}{dt} D^+ \right) |\psi\rangle + D^+ i \frac{d}{dt} |\psi\rangle \\ &= i \left(\frac{d}{dt} D^+ \right) D |\tilde{\psi}\rangle + D^+ H D |\tilde{\psi}\rangle \end{aligned} \quad (VII-45)$$

On en déduit

$$i \frac{d}{dt} |\tilde{\psi}(t)\rangle = \tilde{H}(t) |\tilde{\psi}(t)\rangle$$

$$\text{où } \tilde{H}(t) = i \left[\frac{d}{dt} D(\{\alpha_{kE}(t)\}) \right] D(\{\alpha_{kE}(t)\}) + D^+(\{\alpha_{kE}(t)\}) H D(\{\alpha_{kE}(t)\}) \quad (VII-46)$$

- Calcul de $\tilde{H}(t)$

En prenant l'adjoint de (VII-41), et en utilisant $D^+ D = 1$, on obtient pour le 1^{er} terme de VII-46

$$i \left(\frac{d}{dt} D^+ \right) D = - \sum_{kE} \omega_{kE} \left[\alpha_{kE}^*(t) a_{kE} + \alpha_{kE}(t) a_{kE}^+ + \alpha_{kE}^{(H)} \alpha_{kE}^*(t) \right] \quad (VII-47)$$

Par ailleurs, en utilisant les expressions (VII-28) et (VII-30) de H et V, le fait que H_A commute avec D, et les relations (VII-34), on obtient aisément :

$$\begin{aligned} D^+ H D &= H_A + \sum_{kE} \omega_{kE} [a_{kE}^+ + \alpha_{kE}^*(t)] [a_{kE} + \alpha_{kE}(t)] \\ &\quad - i \vec{D} \cdot \sum_{kE} \left\{ \vec{u}_{kE}(\vec{0}) [a_{kE} + \alpha_{kE}(t)] - \vec{u}_{kE}^*(\vec{0}) [a_{kE}^+ + \alpha_{kE}^*(t)] \right\} \end{aligned} \quad (VII-48)$$

En ajoutant (VII-47) et (VII-48), on obtient finalement :

$$\tilde{H}(t) = H - \vec{D} \cdot \vec{E}_Q(\vec{0}, t) \quad (VII-49)$$

e) Discussions physique

Grâce à la transformation unitaire D^+ , on a ainsi ramené le problème d'un atome interagissant avec des photons incidents dans un état quasi-classique à celui d'un atome initialement dans le vide de photons mais soumis à une perturbation de plus à une perturbation dépendant du temps correspondant à l'hamiltonien d'interaction avec le paquet d'ondes classiques incident.

Il ne faut pas oublier cependant que l'hamiltonien $H = H_A + H_R + V$ figurant dans (VII-49) contient l'interaction V avec les modes quantiques qui va être responsable du fait que les modes des

champs initialement vides vont se remplir (émission spontanée de l'atome perturbé par une onde classique incidente)

Supposons que l'on puisse négliger l'émission spontanée (spectroscopie hertzienne). On peut alors négliger le remplissage des modes initialement vides dans la nouvelle représentation. La solution de l'équation de Schrödinger satisfaite par $|\tilde{\Psi}(t)\rangle$ est alors, si l'on utilise (VII-49) et que l'on néglige V dans H .

$$|\tilde{\Psi}(t)\rangle = |\Psi_A(t)\rangle \otimes e^{-iH_R t} |0\rangle_R \quad (\text{VII-50})$$

où $|\Psi_A(t)\rangle$ est la solution de l'équation de Schrödinger correspondant à l'hamiltonien purement atomique

$$H_A - \vec{D} \cdot \vec{E}_d(\vec{0}, t) \quad (\text{VII-51})$$

(Comme l'énergie du champ est négligée par rapport au vide $|0\rangle_R$, on peut écrire dans VII-50 $e^{-iH_R t} |0\rangle_R = |0\rangle_R$).

Quand on revient ensuite à l'ancienne représentation par action de D , on obtient à partir de (VII-50), compte tenu de (VII-32):

$$|\Psi(t)\rangle = |\Psi_A(t)\rangle \otimes |\{\alpha_{RE}(t)\}\rangle \quad (\text{VII-52})$$

ce qui décrit une situation où le champ de rayonnement peut être considéré comme évoluant librement.

On retrouve ainsi le résultat obtenu en 2. La factorisation du vecteur d'état et la description de l'évolution atomique par une équation de Schrödinger avec perturbations dépendant du temps ne sont valables que si:

- l'état initial du champ est quasi-classique.
- on peut négliger l'émission spontanée.

References

- D 1. C. Fabre Thèse 3^{ème} cycle Paris 1974
 D 2. B.R. Mollow Phys. Rev. A12, 1919 (1975)

L'émission spontanée d'un système à 2 niveaux irradié par un laser résonnant intense

A- Introduction

Nécessité de tenir compte de l'émission spontanée dans le domaine optique.

- Cause importante d'amortissement des observables atomiques.
- Très souvent, le signal de détection lui-même repose sur l'émission spontanée : on observe les photons émis par l'atome excité par l'irradiation laser : Fluorescence de résonance.

Problèmes à résoudre

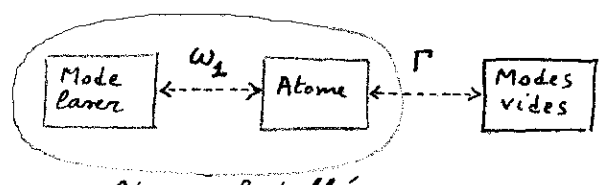
- (i) Description quantitative de l'évolution de l'atome.
- (ii) Détermination quantitative des caractéristiques de la lumière émise ou absorbée : intensité, polarisation, répartition spectrale, statistique des photons...

Les 2 problèmes sont évidemment liés puisque c'est l'atome qui absorbe ou émet la lumière. Dans ce chapitre, nous nous attacherons uniquement à résoudre le point (i). Puis, nous déduirons à partir d'arguments intuitifs, très plausibles, les principales caractéristiques des signaux énoncés en (ii).

Nous reviendrons ultérieurement sur le point (ii) après une étude plus approfondie des signaux de détection optique et des fonctions de corrélation.

Les 2 points de vue possibles.

(voir cours VII pour l'équivalence entre ces 2 points de vue)



Atome habillé

Fig 1 : Point de vue entièrement quantique

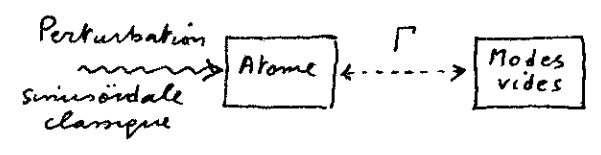


Fig.2 : Point de vue semi-classique

Description par opérateurs densité. Equation pilote.

Dans les 2 cas (figures 1 et 2), le couplage avec les modes vides, qui est maintenant supposé important pendant le temps d'observation, interdit de décrire soit l'atome habillé (fig.1), soit l'atome piloté par l'onde classique (fig.2) par un vecteur d'état. Seule, une description par matrice densité réduite est possible.

Comme l'ensemble des modes vides constitue un très gros réservoir et que l'interaction avec ce réservoir est caractérisé par un temps de corrélation très court, on peut décrire par une équation pilote, l'évolution de cette matrice densité réduite (cf cours 75-76)

Deux cas limites intéressants

(i) Faibles intensités ($\omega_1 \ll \Gamma$) ou grands désaccords ($\Gamma, \omega_1 \ll |\omega_0 - \omega_L|$)

On peut chercher la solution de l'équation pilote sous forme d'un développement en puissances de $\frac{\omega_1}{\Gamma}$ ou $\frac{\omega_1}{\omega_0 - \omega_L}$. (voir développement perturbatif du cours V, ou les diagrammes de Feynman permettant de calculer les amplitudes de diffusion non-résonnante ou résonnante : cours 74-75 p VII-1 et 75-76 p. V-1)
Compréhensions perturbatives des phénomènes (processus à 1, 2, ... photons)

(ii) Fortes intensités ($\omega_1 \gg \Gamma$)

On peut chercher la solution de l'équation pilote sous forme d'un développement en puissances de Γ/ω_1 . On traite d'abord à tous les ordres le couplage résonnant atome laser, puis perturbativement l'effet des termes d'amortissement par émission spontanée.

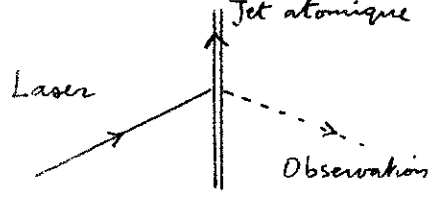
But de ce chapitre

- Etudier l'émission spontanée dans le point de vue de l'atome habillé.
- Montrer que l'équation pilote correspondante se simplifie considérablement à la limite des champs intenses (ou des grands désaccords).
- Analyser le contenu physique de cette équation et en extraire des résultats simples pour les signaux de détection : positions, largeurs et poids des raies en fluorescence et en absorption, statistique des photons.
- Comparer cette approche avec l'approche semi-classique (souligner les "pièges" des 2 approches).

Hypothèses

- Dans tout ce chapitre, on se supposera placé dans le référentiel au repos de l'atome. ω_L est la fréquence du laser dans ce référentiel

Fig. 3



les résultats obtenus seront donc directement applicables aux expériences réalisées sur des jets atomiques irradiés et observés à angle droit (pas d'effet Doppler voir fig. 3)

Nous aborderons ultérieurement l'étude des effets non-rcamp observables dans une vapeur, après avoir effectuée la moyenne sur les vitesses conformément à la méthode de résolution graphique exposée page II-9.

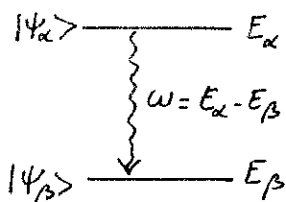
En d'autres termes, on considèrera soit des atomes immobiles, soit une classe de vitesses.

- De même, nous ignorerons momentanément l'effet de collisions.
- On supposera enfin que l'état inférieur a du système à 2 niveaux est l'état fondamental, l'état supérieur b le premier état excité (système fermé vis à vis de l'émission spontanée)

① Comment trouver les fréquences émises spontanément ?

- En l'absence d'émission spontanée, les états $|\psi_\alpha\rangle$ de l'atome habillé, d'énergie E_α , sont des états stationnaires.

- Le couplage avec les modes vides va provoquer des transitions entre ces états : transitions d'un état $|\psi_\alpha\rangle$ vers un état inférieur $|\psi_\beta\rangle$ avec émission d'un photon de fréquence $\omega = E_\alpha - E_\beta$.



Les fréquences "permises" correspondent à des paires de niveaux entre lesquels l'opérateur dipôle électrique D a un élément de matrice non nul (transitions dipolaires électriques)

- Il faut donc rechercher les éléments de matrice non nuls de D

② Éléments de matrice de l'opérateur dipôle électrique D .

$|1, n\rangle = \cos\varphi |b, n\rangle + \sin\varphi |a, n+1\rangle$

$|2, n\rangle = -\sin\varphi |b, n\rangle + \cos\varphi |a, n+1\rangle$

$|1, n-1\rangle = \cos\varphi |b, n-1\rangle + \sin\varphi |a, n\rangle$

$|2, n-1\rangle = -\sin\varphi |b, n-1\rangle + \cos\varphi |a, n\rangle$

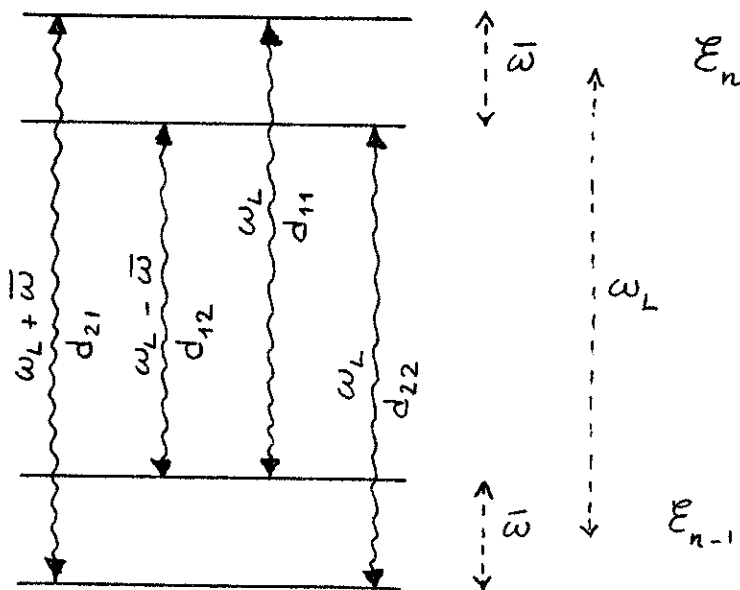


Fig. 4

- Rappel des résultats du cours II (dans le cadre de r.w.a.)

$\delta = \omega_0 - \omega_L$ $\bar{\omega} = \sqrt{\omega_1^2 + \delta^2}$ (VIII-1)

$\text{tg } 2\varphi = \frac{\omega_1}{\delta}$ ($\omega_1 > 0$, $0 \leq 2\varphi \leq \pi$) (VIII-2)

Les expressions des états propres $|1, n\rangle$ et $|2, n\rangle$ de la multiplicité E_n en fonction des états non perturbés $|a, n+1\rangle$ et $|b, n\rangle$ sont indiquées sur la fig. 4

- Les seuls éléments de matrice non nuls de D relient un état de E_n à un état de E_{n-1} ou E_{n+1} (D relie a à b , b à a et ne change pas n).

Les 4 éléments de matrice de D entre un état de E_n et un état de E_{n-1} correspondent aux 4 transitions représentées par les lignes ondulées verticales de la figure 4.

Si l'on pose

$$\langle j, n-1 | D | i, n \rangle = d_{ji} \quad (\text{VIII-3})$$

$$\langle a | D | b \rangle = d \text{ réel} \quad (\text{VIII-4})$$

il vient compte tenu de l'expression des états perturbés $|i, n\rangle$ et $|j, n-1\rangle$

$$\begin{cases} d_{11} = -d_{22} = d \sin\varphi \cos\varphi \\ d_{12} = -d \sin^2\varphi \\ d_{21} = d \cos^2\varphi \end{cases} \quad (\text{VIII-5})$$

- Remarque : si l'on ne fait pas l'approximation v.w.2 (et si l'on tient compte des autres niveaux atomiques non couplés de manière résonnante au laser), on trouve que D a d'autres éléments de matrice entre E_n et $E_{n\pm 3}, E_{n\pm 5} \dots$ (génération d'harmoniques) les paires harmoniques paires sont exclues pour des raisons de parité

③ Le triplet de fluorescence.

A partir de l'approche précédente, on prévoit immédiatement que le spectre de fluorescence d'un atome à 2 niveaux irradié par un laser intense résonnant (ou quasi-résonnant) est constitué d'un triplet de 3 raies centrées en $\omega_L, \omega_L + \bar{\omega}, \omega_L - \bar{\omega}$. (Voir références théoriques et expérimentales à la fin du chapitre).

④ Interaction perturbative à la limite des grands désaccords

- Si le désaccord est grand, c-à-d si $|\delta| = |\omega_0 - \omega_L| \gg \omega_1, \Gamma$, on a d'après VIII-1

$$\bar{\omega} \approx |\delta| \quad (\text{VIII-6})$$

et les 3 fréquences du triplet deviennent égales à

$$\omega_L, \omega_0, 2\omega_L - \omega_0 \quad (\text{VIII-7})$$

- Raie centrale ω_L

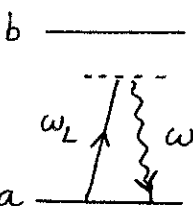


Fig. 5

Diffusion Rayleigh élastique
 $\omega = \omega_L$

- Raies latérales ω_0 et $2\omega_L - \omega_0$

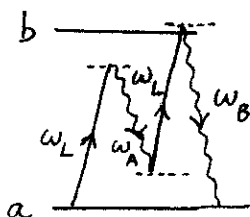


Fig. 6

Processus non linéaire où l'atome partant de a absorbe 2 photons laser ω_L et émet 2 photons ω_A et ω_B pour se retrouver finalement dans a.

La conservation de l'énergie implique

$$\omega_A + \omega_B = 2\omega_L \quad (\text{VIII-8})$$

les 2 photons ω_A et ω_B sont donc très corrélés.

L'amplitude de diffusion associée au processus de la figure 6 est importante si, à l'issue de l'absorption du 2^{ème} photon laser ω_L , l'atome se retrouve dans l'état b (à la largeur naturelle Γ de ce niveau près), c.-à-d si

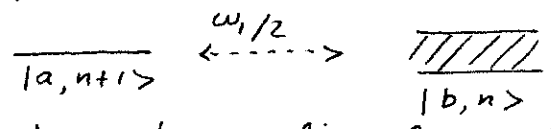
$$2\omega_L - \omega_A = \omega_0 \quad \text{à } \Gamma \text{ près} \quad (\text{VIII-9})$$

ce qui permet de comprendre pourquoi $\omega_A \approx 2\omega_L - \omega_0$ et par suite pourquoi, d'après (VIII-8), pourquoi $\omega_B \approx \omega_0$.

⑤ Nécessité d'un traitement plus précis.

(i) L'émission spontanée peut modifier complètement le diagramme d'énergie de l'atome habillé.

Pour voir en il peut en être ainsi, supposons par exemple $\omega_L = \omega_0$ et $\omega_1 \ll \Gamma$. Il est dans ce cas préférable de tenir compte de l'émission spontanée d'abord, avant de considérer le couplage atome-laser. On est ainsi conduit au problème de 2 états de même énergie: $|b, n\rangle$ de largeur $\Gamma/2$ et $|a, n+1\rangle$ de largeur nulle (l'état fondamental est stable) couplés par une interaction $\omega_1/2$.



Il faut donc diagonaliser la matrice 2x2 non hermitique

$$\begin{pmatrix} 0 & \frac{\omega_1}{2} \\ \frac{\omega_1}{2} & -i\frac{\Gamma}{2} \end{pmatrix} \quad (\text{VIII-10})$$

Les 2 valeurs propres complexes ont pour $\omega_1 \ll \Gamma$ la même partie réelle (régime sous critique) mais des parties imaginaires différentes.

Les 2 états perturbés de l'atome habillé restent donc dégénérés et il serait faux de croire que le spectre de fluorescence est une somme de 3 lorentziennes (même très larges devant ω_1), centrées en $\omega_L, \omega_L \pm \omega_1$.

(ii) Même si $\omega_1 \gg \Gamma$, c.-à-d même si la perturbation apportée par l'émission spontanée au diagramme de l'atome habillé est faible, il faut encore calculer les largeurs et poids des diverses raies du spectre.

En particulier, il serait faux de croire que le poids de la raie $|i, n\rangle \rightarrow |j, n-1\rangle$ est simplement proportionnel à $|\langle i, n | D | j, n-1 \rangle|^2$. Il faut également tenir compte des populations des niveaux de l'atome habillé.

C'est pourquoi il est nécessaire de passer maintenant à une description plus quantitative par équations piloté.

C - Généralités sur l'équation pilote de l'atome habillé.

① Equation pilote décrivant l'émission spontanée de l'atome "nu" (voir cours 75-78)

Forme explicite. Interprétation physique (Γ : largeur naturelle de b)

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \sigma_{bb} = -\Gamma \sigma_{bb} & \text{(VIII-11-a)} \\ \frac{d}{dt} \sigma_{aa} = \Gamma \sigma_{aa} & \text{(VIII-11-b)} \\ \frac{d}{dt} \sigma_{ba} = -\frac{\Gamma}{2} \sigma_{ba} & \text{(VIII-11-c)} \end{cases}$$

La 1^{ère} équation décrit comment b se vide par émission spontanée, la 2^{ème} comment a se remplit à partir de b . La 3^{ème} décrit l'amortissement du dipôle optique.

Expression de Γ

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_{\vec{k}, \vec{E}} |\langle a | D | b \rangle|^2 |\langle \vec{k}, \vec{E} | E | 0 \rangle|^2 \rho_f(\omega = \omega_0) \quad \text{(VIII-12)}$$

Somme sur \vec{k} et \vec{E} des probabilités par unité de temps d'émission d'un photon \vec{k}, \vec{E} . E : opérateur champ électrique. ρ_f densité d'états finaux du photon ($\propto \omega^2$).

Dans la suite, on réintègrera les facteurs $\frac{2\pi}{\hbar} \sum_{\vec{k}, \vec{E}} |\langle \vec{k}, \vec{E} | D | 0 \rangle|^2 \rho_f$ dans D de manière à pouvoir écrire :

$$\Gamma = d^2 \quad \text{avec} \quad d = \langle a | D | b \rangle \text{ réel} \quad \text{(VIII-13)}$$

Il ne faut pas oublier cependant la dépendance en ω_0^3 de Γ (un facteur ω_0^2 à cause de ρ_f , un facteur ω_0 à cause de $|\langle E \rangle|^2$)

Forme opératorielle de l'équation pilote.

- Avec la définition (VIII-13) de Γ , on vérifie aisément que l'équation pilote (VIII-11) peut s'écrire opératoirement sous la forme :

$$\frac{d}{dt} \sigma = -\frac{1}{2} \{ D^+ D^-, \sigma \}_+ + D^- \sigma D^+ \quad \text{(VIII-14)}$$

où $\{A, B\}_+ = AB + BA$ désigne l'anticommutateur de A et B et où :

$$D^+ = d |b\rangle \langle a| \quad D^- = d |a\rangle \langle b| \quad \text{(VIII-15)}$$

Projeté sur la base $\{|a\rangle, |b\rangle\}$, l'équation (VIII-14) redonne en effet (VIII-11)

- Le 1^{er} terme de (VIII-14) décrit l'amortissement par émission spontanée. On peut décrire cet amortissement en ajoutant un terme imaginaire à l'énergie des niveaux atomiques, $-i\Gamma/2$ pour b , 0 pour a (c'est ce qui justifie l'écriture d'"hamiltoniens non-hermitiques" comme VIII-10). En toute rigueur, il faudrait ajouter à l'anticommutateur de VIII-14 un commutateur représentant les "Lamb-shifts" de b et a . On les supposera, pour simplifier, réintégrés dans l'énergie de b et a .
- Le 2^{ème} terme de (VIII-14) représente le transfert de b vers a par émission spontanée.
- lorsqu'on tient compte de l'hamiltonien atomique H_A , l'équation pilote devient :

$$\frac{d}{dt} \sigma = -\frac{1}{2} \{ D^+ D^-, \sigma \}_+ + D^- \sigma D^+ - i [H_A, \sigma] \quad \text{(VIII-16)}$$

② Discussion physique de quelques approximations utilisées pour écrire l'équation pilote de l'atome habillé

(i) Est-il possible de décrire l'émission spontanée de l'atome habillé par une équation pilote ?

Réponse : oui (comme pour l'atome nu) car le temps de corrélation ^(τ_c) de fluctuations du vide responsables de l'émission spontanée est très court (de l'ordre d'une période optique) devant le temps moyen $1/\Gamma$ au bout duquel se produit un processus d'émission spontanée.

Attention à ne pas confondre τ_c et $1/\Gamma$ (comme il ne faut pas confondre en théorie des collisions la durée d'une collision et le temps moyen entre collisions)

Dans le langage des fréquences, on peut considérer la densité spectrale des fluctuations du vide (qui varie en ω^3) comme constante sur un intervalle de largeur Γ autour des fréquences ω_0 et ω_L intervenant dans le problème

$$\Gamma \ll \omega_0, \omega_L \quad (VIII-17)$$

On pourrait immédiatement écrire l'équation pilote dans la base des états propres $\{|i, n\rangle\}$ de l'atome habillé en utilisant les formules générales établies dans le cours 75-76. Mais nous ne le ferons pas ici car nous allons introduire d'autres approximations qui simplifient encore les calculs.

(ii) Les termes d'émission spontanée sont-ils indépendants du couplage atome-laser ? (Approximation de vitesses de variations indépendantes)

- Discussion dans l'espace des temps.

Les fluctuations du vide, responsables de l'émission spontanée, n'agissent que sur le dipôle atomique, et non sur les photons laser.

Pendant une "interaction élémentaire" (durant le temps τ_c) entre l'atome et les fluctuations du vide, on pourra considérer que les photons laser restent "spectateurs" si le couplage atome-photons laser n'a pas le temps de se faire sentir pendant ce temps τ_c (on précisera ci-dessous la condition de validité d'une telle approximation). Dans ce cas, seule la partie atomique de σ évoluera au cours des temps τ_c , conformément à l'équation pilote de l'atome nu (VIII-14).

Bien sûr, pendant le temps beaucoup plus long ($\sim 1/\Gamma$) séparant 2 interactions élémentaires, l'atome et les photons laser ont le temps d'interagir, et il faudra tenir compte de l'évolution correspondante qui est simple à écrire dans la base de l'atome habillé.

Analogie avec d'autres problèmes bien connus, par exemple celui des collisions d'un atome A possédant un spin électronique \vec{S} et un spin nucléaire \vec{I} couplés par une interaction hyperfine $\propto \vec{S} \cdot \vec{I}$ et subissant des collisions contre un perturbateur P. L'interaction A-P n'agit en général que sur \vec{S} et non sur \vec{I} . Si le temps de collision est très court devant $1/a$, les 2 spins n'ont pas le temps d'interagir pendant une collision. \vec{S} seul est affecté

alors que \vec{I} reste immobile. Entre 2 collisions, \vec{S} et \vec{I} se recomplent et précèdent autour de leur résultante \vec{F} .

- Discussion dans l'espace des fréquences

Dans l'interaction atome nu - vide, la seule fréquence de Bohr qui intervient pour le dipôle atomique D est la fréquence atomique ω_0 .

L'interaction atome - laser fait apparaître 3 fréquences de Bohr dans le mouvement de D : $\omega_L, \omega_L + \bar{\omega}, \omega_L - \bar{\omega}$, qui sont de l'ordre de $\omega_L, \omega_L + \omega, \omega_L - \omega$ à résonance, $\omega_L, \omega_0, 2\omega_L - \omega_0$ hors résonance.

Vis à vis de l'interaction atome-laser, l'interaction avec les fluctuations du vide pourra être considéré comme ayant un temps de corrélation suffisamment court, c-à-d un spectre suffisamment "blanc", si la densité spectrale de ces fluctuations (qui varie en ω^3) a à peu près la même valeur pour ces 3 fréquences : $(\omega_L)^3 \approx (\omega_L + \bar{\omega})^3 \approx (\omega_L - \bar{\omega})^3$.

Compte tenu de l'expression de $\bar{\omega}$, on en déduit la condition de validité de l'approximation des vitesses de variation indépendantes :

$$\omega_L, |\omega_L - \omega_0| \ll \omega_0 \tag{VIII-18}$$

- Conséquences sur la forme mathématique de l'équation pilote

Si l'on peut négliger l'interaction atome-laser pendant le temps t_c , les nombres quantiques relatifs aux photons laser restent "spectateurs" dans l'équation pilote écrite dans la base non-perturbée $\{|a, n\rangle, |b, n\rangle\}$. Par exemple, à partir de (VIII-11-c), on obtient :

$$\frac{d}{dt} \langle a, n | \sigma | b, n' \rangle = - \frac{\Gamma}{2} \langle a, n | \sigma | b, n' \rangle \tag{VIII-19}$$

Comme les opérateurs D^+, D^- n'agissent pas sur n, n' , l'équation opératorielle VIII-14 demeure valable, σ étant cependant un opérateur de $E_A \otimes E_R$ (au lieu de E_A seulement), et on peut projeter cette équation, soit sur la base non-perturbée $\{|a, n\rangle, |b, n\rangle\}$ soit sur la base perturbée $\{|1, n\rangle, |2, n\rangle\}$.

Le couplage atome - laser se retrouve bien sur dans le terme d'évolution propre qui, au lieu de H_A , fait intervenir l'hamiltonien Total

$$H = H_A + H_R + V \tag{VIII-20}$$

de l'atome habillé.

Si les conditions (VIII-18) sont remplies, l'équation pilote de l'atome habillé s'écrit donc :

$$\frac{d}{dt} \sigma = \{D^+ D^-, \sigma\}_+ + D^- \sigma D^+ - i [H, \sigma] \tag{VIII-21}$$

On peut donc, lorsque les conditions (VIII-18) sont remplies, ajouter indépendamment les termes décrivant l'émission spontanée, calculés comme si le couplage atome-laser était nul, et ceux décrivant l'interaction atome-laser.

Si les conditions (VIII-18) n'étaient pas remplies, il serait toujours possible d'écrire une équation pilote, mais les termes décrivant l'émission spontanée seraient moins simples que les 1^{er} et 2^{em} termes de (VIII-21). En particulier, ils dépendraient de ω_l et $\omega_L - \omega_0$.

- Dans l'approche semi-classique, on ajoute souvent indépendamment les termes d'émission spontanée (VIII-11) et ceux décrivant l'interaction avec l'onde laser classique. Il ressort de ce qui précède, qu'il s'agit là d'une approximation qui n'est pas toujours forcément valable.
- Les conditions de validité (VIII-18) sont identiques à celle de l'approximation r.v.z. et à celle qui permettent de se limiter à 2 niveaux.

(iii) Approximation séculaire.

- Supposons l'équation pilote écrite dans la base des états propres de l'hamiltonien H de l'atome habitué.

On peut négliger le couplage entre 2 éléments de matrice dense si la fréquence différente entre les fréquences d'évolution propre correspondantes est suffisamment grande par rapport au coefficient de couplage, de l'ordre de Γ .

Ainsi, si
$$\bar{\omega} = \sqrt{\omega_1^2 + \delta^2} \gg \Gamma \quad (\text{VIII-22})$$

on peut négliger :

- x les couplages entre populations $\langle i, n | \rho | i, n \rangle$ ($i=1,2$), dont la fréquence d'évolution est 0, et les cohérences base fréquence $\langle 1, n | \rho | 2, n \rangle$ (fréquence d'évolution $\bar{\omega}$). Les populations ne sont alors couplées qu'entre elles, ce qui simplifie beaucoup l'interprétation physique.
- x les couplages entre cohérences optiques évoluant à $\omega_L, \omega_L + \bar{\omega}, \omega_L - \bar{\omega}$.
- D'après (VIII-22), l'approximation séculaire est valable lorsque les 3 composantes du triplet de fluorescence sont suffisamment bien séparées par rapport à Γ , ce qui se produit soit en champs intenses ($\omega \gg \Gamma$), soit suffisamment hors résonance ($|\omega_0 - \omega_L| \gg \Gamma$)
- les 2 approximations (ii) et (iii) sont indépendantes. Si $|\omega_0 - \omega_L|$ est grand devant Γ et non négligeable devant ω_0 , on peut faire l'approximation séculaire, mais non l'approximation des vitesses de variations indépendantes (Si $\omega \ll |\omega_0 - \omega_L|$, il est d'ailleurs plus simple dans ce cas de faire un calcul perturbatif).

En conclusion,

- 1 - On peut toujours écrire une équation pilote pour décrire l'évolution de l'atome habitué en présence d'émission spontanée (VIII-17 est toujours vérifiée).
- 2 - Pour des champs laser non ultra-intenses et pour des désaccords pas trop grands (conditions VIII-18), cette équation pilote se simplifie : on peut ajouter indépendamment les termes d'émission spontanée, calculés comme si l'interaction atome-laser était nulle, et ceux décrivant l'interaction atome-laser.
- 3 - Lorsque la largeur naturelle Γ est suffisamment petite devant ω , ou δ (conditions VIII-22), on peut négliger les couplages non séculaires associés à l'émission spontanée, ce qui simplifie les calculs et les discussions physiques.

L'émission spontanée d'un système à 2 niveaux irradié par un laser résonnant intense (suite)

D. Evolution des populations de l'atome habillé.

Dans ce §, on explicite l'équation pilote (VIII-21) pour les populations des niveaux perturbés $|i, n\rangle$. On interprète physiquement ces équations, on les résout et on en extrait un certain nombre de résultats relatifs aux photons de fluorescence.

① Equations d'évolution - Interprétation physique.

Etablissement des équations d'évolution

- Soit $\pi_{i,n}(t) = \langle i, n | \rho(t) | i, n \rangle$ (IX-1)
la population du niveau perturbé $|i, n\rangle$ de l'atome habillé.

- Supposons que l'approximation des vitesses de variations indépendantes soit valable (condition VIII-18). On déduit de (VIII-21) que

$$\frac{d}{dt} \pi_{i,n}(t) = -\frac{1}{2} \langle i, n | \{ D^+ D^-, \sigma(t) \}_+ | i, n \rangle + \langle i, n | D^- \sigma(t) D^+ | i, n \rangle \quad (IX-2)$$

- Supposons que l'approximation séculaire soit valable (condition VIII-22). Dans le 2^{ème} membre de (IX-2), on peut négliger les éléments de $\sigma(t)$ autres que des populations.

- Termes d'amortissement (1^{er} terme du 2^{ème} membre de IX-2)
Ils s'écrivent, compte tenu de l'approximation séculaire :

$$\begin{aligned} -\pi_{i,n}(t) \langle i, n | D^+ D^- | i, n \rangle &= -\pi_{i,n}(t) \sum_{j, n'} |\langle j, n' | D^- | i, n \rangle|^2 \\ &= -\pi_{i,n}(t) \sum_j |\langle j, n-1 | D^- | i, n \rangle|^2 = -\pi_{i,n}(t) \sum_j d_{ji}^2 \end{aligned} \quad (IX-3)$$

car, d'après les résultats du § B2 :

$$\langle j, n' | D^- | i, n \rangle = S_{n', n-1} \langle j, n' | D | i, n \rangle = S_{n', n-1} d_{ji} \quad (IX-4)$$

- Termes de transfert (2^{ème} terme du 2^{ème} membre de IX-2).
Des calculs analogues aux précédents donnent :

$$\sum_{l, n'} \langle i, n | D^- | l, n' \rangle \pi_{l, n'}(t) \langle l, n' | D^+ | i, n \rangle = \sum_l \pi_{l, n+1}(t) d_{il}^2 \quad (IX-5)$$

- Finalement, si l'on pose :

$$d_{ji}^2 = \Gamma_{ji} \quad (IX-6)$$

$$\Gamma_i = \sum_j \Gamma_{ji} \quad (IX-7)$$

il vient :

$$\boxed{\frac{d}{dt} \pi_{i,n}(t) = -\Gamma_i \pi_{i,n}(t) + \sum_l \Gamma_{il} \pi_{l, n+1}(t)} \quad (IX-8)$$

Interprétation physique

Γ_{ji} peut être interprété comme un temps de transition par unité de temps de $|i, n\rangle$ vers $|j, n-1\rangle$ (notez l'ordre de i et j dans Γ_{ji} qui correspond à $\Gamma_{j \leftarrow i}$)

l'équation (IX-8) exprime que la population du niveau $|i, n\rangle$

décroit à cause de transitions qui se produisent de $|i, n\rangle$ vers des états inférieurs (appartenant à E_{n-1}), et croit à cause de transitions qui viennent alimenter $|i, n\rangle$ à partir d'états supérieurs $|l, n+1\rangle$ (appartenant à E_{n+1}).

Donc interprétation très simple en termes de temps de transition.

Remarques

(i) Si $\omega_0 - \omega_L$ est suffisamment grand pour ne pas être négligeable devant ω_0 et ω_L , l'approximation des vitesses de variations indépendantes n'est plus valable alors que l'approximation séculaire le demeure.

Il faut alors tenir compte de la variation en ω^3 des temps de transfert Γ_{ij} . Dans l'équation IX-8, ils sont tous pris proportionnels à ω_0^3 (temps d'immersion spontané de l'atome nu). Compte tenu des fréquences des transitions $|i, n\rangle \rightarrow |j, n-1\rangle$ (cf Jyp. 4 page VIII-3) il faut donc opérer la substitution :

$$\Gamma_{11} \rightarrow d_{11}^2 \left(\frac{\omega_L}{\omega_0}\right)^3 \quad \Gamma_{22} \rightarrow d_{22}^2 \left(\frac{\omega_L}{\omega_0}\right)^3 \quad \Gamma_{21} \rightarrow d_{21}^2 \quad \Gamma_{12} \rightarrow d_{12}^2 \left(\frac{2\omega_L - \omega_0}{\omega_0}\right)^3 \quad (IX-6_{bis})$$

(ii) En conservant tous les termes au 2^{ème} membre de (IX-2) on obtiendrait aisément les termes "non-séculaires". On verrait ainsi que l'évolution de $\Pi_{12}(t)$ est couplée à $\langle 1, n | \sigma | 2, n \rangle$, $\langle 2, n | \sigma | 1, n \rangle$, $\langle 1, n+1 | \sigma | 2, n+1 \rangle$, $\langle 2, n+1 | \sigma | 1, n+1 \rangle$ avec des coefficients qui sont simplement des produits d'éléments de matrice de D.

(iii) Les d_{ij} , Γ_{ij} ... introduits plus haut dépendent en toute rigueur de n . Mais nous avons déjà dit à plusieurs reprises que l'on peut négliger les variations de \sqrt{n} , et par suite celles de d_{ij} , Γ_{ij} ... quand n varie dans un intervalle \sqrt{n} autour de \bar{n} . Les d_{ij} , Γ_{ij} ... sont donc de notation abrégée pour $d_{ij}(\frac{\bar{n}}{\sqrt{\bar{n}}})$, $\Gamma_{ij}(\frac{\bar{n}}{\sqrt{\bar{n}}})$... c-à-d pour $d_{ij}(\omega, \delta)$, $\Gamma_{ij}(\omega, \delta)$...

② Conditions initiales

Entrée soudaine

- A l'instant initial 0, on suppose que l'atome entre soudainement dans le faisceau laser. Par exemple, dans des expériences de jet, on suppose que, au moyen de caches convenablement disposés, l'atome voit l'intensité laser passer brusquement de 0 à une valeur constante.

- Etat initial de l'atome $|\Psi_A\rangle$: en général l'état fondamental $|\Psi_A\rangle = |a\rangle \quad (IX-9-a)$

- Etat initial du champ : état quadratique $|\Psi_R\rangle = \sum_n c_n |n\rangle \quad (IX-9-b)$

On posera $P_0(n) = |c_n|^2 \quad (IX-10)$

$P_0(n)$ est la ~~probabilité~~ distribution du nombre de photons dans le mode laser (distribution quadratique centrée en \bar{n} et de largeur $\sqrt{\bar{n}}$ très grande).

- Etat initial du système global $|\Psi(0)\rangle = \sum_n c_n |a, n\rangle \quad (IX-11)$

$$\Pi_{i,n}(0) = |\langle i,n | \Psi(0) \rangle|^2 = |c_{n+1}|^2 |\langle i,n | a, n+1 \rangle|^2 \quad (IX-12)$$

Dans (IX-12), $|c_{n+1}|^2 = p_0(n+1)$ peut être remplacé par $p_0(n)$. D'autre part, $\langle i,n | a, n+1 \rangle$ peut être calculé aisément à partir du développement des états perturbés sur les états non perturbés (cf fig 4 page VIII-3)

On obtient ainsi :

$$\Pi_{i,n}(0) = p_0(n) \Pi_i(0) \quad (IX-13)$$

avec $\Pi_1(0) = \sin^2 \varphi \quad \Pi_2(0) = \cos^2 \varphi \quad (IX-14)$

③ Etude d'un cas entièrement soluble

a) Hypothèses.

- On se suppose placé à résonance. Donc, d'après (VIII-1) et (VIII-2)

$$\cos^2 \varphi = \sin^2 \varphi = 1/2 \quad (IX-15)$$

et par suite, d'après (IX-6), (IX-7) et (VIII-5) :

$$\begin{cases} \Gamma_{11} = \Gamma_{22} = \Gamma_{12} = \Gamma_{21} = \Gamma/4 \\ \Gamma_1 = \Gamma_2 = \Gamma/2 \end{cases} \quad (IX-16)$$

- les équations d'évolution des populations s'écrivent donc :

$$\begin{cases} \frac{d}{dt} \Pi_{1,n} = -\frac{\Gamma}{2} \Pi_{1,n} + \frac{\Gamma}{4} \Pi_{1,n+1} + \frac{\Gamma}{4} \Pi_{2,n+1} \\ \frac{d}{dt} \Pi_{2,n} = -\frac{\Gamma}{2} \Pi_{2,n} + \frac{\Gamma}{4} \Pi_{1,n+1} + \frac{\Gamma}{4} \Pi_{2,n+1} \end{cases} \quad (IX-17)$$

Elles sont visiblement invariantes par échange de 1 et 2. Comme d'autre part, d'après (IX-14) et (IX-15), les conditions initiales sont symétriques

$$\Pi_{1,n}(0) = \Pi_{2,n}(0) = \frac{1}{2} p_0(n) \quad (IX-18)$$

on en déduit que la solution de (IX-17) reste symétrique et nous poserons

$$\Pi_{1,n}(t) = \Pi_{2,n}(t) = \frac{1}{2} \Pi_n(t) \quad (IX-19)$$

avec, compte tenu de (IX-18)

$$\Pi_n(0) = p_0(n) \quad (IX-20)$$

$\Pi_n(t)$ représente la population totale de la multiplicité E_n à l'instant t .

b) Solution des équations d'évolution.

- Reportant (IX-19) dans (IX-17) on obtient l'équation suivante pour $\Pi_n(t)$ (équation aux différences finies) :

$$\frac{d}{dt} \Pi_n(t) = \frac{\Gamma}{2} [\Pi_{n+1}(t) - \Pi_n(t)] \quad (IX-21)$$

- La solution de cette équation correspondant à la condition initiale :

$$\Pi_{n'}(0) = \delta_{nn'} \quad (IX-22)$$

est très simple. On vérifie par substitution directe qu'elle s'écrit :

$$\begin{cases} \Pi_{n-k}(t) = e^{-\Gamma t/2} \frac{(\Gamma t/2)^k}{k!} \text{ pour } k \geq 0 \\ = 0 \text{ pour } k < 0 \end{cases} \quad (IX-23)$$

- Comme l'équation (IX-21) est linéaire, on en déduit immédiatement ^(IX-4) la solution de (IX-21) correspondant à la condition initiale (IX-20),

$$P_n(t) = \sum_{k=0}^{\infty} P_0(n+k) e^{-\Gamma t/2} \frac{(\Gamma t/2)^k}{k!} \quad (\text{IX-24})$$

c) Discussion physique.

(i) Distribution du nombre de photons émis au bout d'un temps T.

Quelle est la loi de distribution $P_k(T)$ du nombre de photons émis au bout d'un temps T (sans rien préciser en plus sur la fréquence de ces photons)?

Supposons d'abord que l'atome habillé parte à $t=0$ de la multiplicité E_n (conditions initiales IX-22). S'il a émis k photons au bout d'un temps T, c'est en fait k cascades radiatives vers le bas et on retrouve dans E_{n-k} . Donc $P_k(T)$ est égal à la probabilité de retrouver l'atome habillé à l'instant T dans E_{n-k} , c-à-d $P_{n-k}(T)$ donné en (IX-23)

Il faut maintenant multiplier $P_{n-k}(T)$ par la probabilité $P_0(n)$ de partir de E_n à $t=0$, puis sommer sur n . Comme, d'après (IX-23), $P_{n-k}(T)$ ne dépend pas de n et que $\sum_n P_0(n) = 1$, on a finalement

$$P_k(T) = e^{-\Gamma T/2} \frac{(\Gamma T/2)^k}{k!} \quad (\text{IX-25})$$

On trouve une distribution de Poisson centrée en $\bar{k} \approx \Gamma T/2$ et de largeur $\sim \sqrt{\Gamma T/2}$.

L'approche de l'atome habillé nous a donc permis d'obtenir indirectement mais très simplement le résultat suivant : un atome dans l'état fondamental, entrant brusquement dans un faisceau laser résonnant et intense, et y demeurant un temps T, n'émet pas un nombre bien défini de photons. Il en émet un nombre moyen $\Gamma T/2$, avec une dispersion de l'ordre de $\sqrt{\Gamma T/2}$.

(ii) Evolution de la distribution ^{du nombre de} photons dans le mode laser.

- D'après (IX-24), on peut écrire :

$$P_n(T) = \sum_{k=0}^{\infty} P_0(n+k) P_k(T) \quad (\text{IX-26})$$

- $P_k(T)$ peut en quelque sorte être considéré comme une "fonction de Green" permettant de calculer la distribution $P_n(T)$ à l'instant T en fonction de la distribution initiale $P_0(n)$.

Comme $P_k(T)$ n'existe que pour $k \geq 0$, $P_k(T)$ décrit un déplacement vers le bas de $P_0(n)$ d'une quantité $\Gamma T/2$ (vitesse de déplacement $\Gamma/2$), accompagné d'une diffusion en $\sqrt{\Gamma T/2}$.

Or, la largeur de $P_0(n)$ est très grande devant $\Gamma T/2$. (Rappelons que dans l'espace libre, on peut faire tendre n vers $+\infty$ en même temps que le volume V de la cavité fictive renfermant l'onde laser).

- On peut donc négliger le nombre de photons perdus par le mode laser alors que ce phénomène est évidemment crucial pour les modes vides qui, initialement vides, se remplissent petit à petit.

④. Etude du cas général

IX-5

a) Ecriture des équations sous forme matricielle

- Appelons $\sigma(n,t)$ le vecteur colonne ayant pour composantes $\pi_{1,n}(t)$ et $\pi_{2,n}(t)$. Les équations (IX-6) s'écrivent matriciellement :

$$\frac{d}{dt} \sigma(n,t) = -A \sigma(n,t) + B \sigma(n+1,t) \quad (\text{IX-27})$$

où A et B sont les 2 matrices 2×2 suivantes :

$$A = \begin{pmatrix} \Gamma_1 & 0 \\ 0 & \Gamma_2 \end{pmatrix} \quad B = \begin{pmatrix} \Gamma_{11} & \Gamma_{12} \\ \Gamma_{21} & \Gamma_{22} \end{pmatrix} \quad (\text{IX-28})$$

- Avec ces notations, on peut écrire (IX-13) sous la forme

$$\sigma(n,0) = p_0(n) \pi(0) \quad (\text{IX-29})$$

où $\pi(0)$ est le vecteur de composantes $\pi_1(0)$ et $\pi_2(0)$

- Si l'on introduit la matrice C

$$C = A - B = \begin{pmatrix} \Gamma_1 - \Gamma_{11} & -\Gamma_{12} \\ -\Gamma_{21} & \Gamma_2 - \Gamma_{22} \end{pmatrix} \quad (\text{IX-30})$$

on peut réécrire (IX-27) sous la forme

$$\frac{d}{dt} \sigma(n,t) = -C \sigma(n,t) + B [\sigma(n+1,t) - \sigma(n,t)] \quad (\text{IX-31})$$

b) Résolution approchée des équations d'évolution. Régime stationnaire de cascade.

- La distribution en n de $\sigma(n,t)$ a, comme $p_0(n)$, une largeur très grande, de l'ordre de \sqrt{n} . Donc le dernier terme de (IX-31) est très petit, environ $1/\sqrt{n}$ fois plus petit que le premier. On peut donc négliger ce dernier terme et réécrire (IX-31) sous la forme :

$$\frac{d}{dt} \sigma(n,t) = -C \sigma(n,t) \quad (\text{IX-32})$$

dont la solution est, compte tenu de la condition initiale (IX-29) :

$$\sigma(n,t) = p_0(n) \pi(t) \quad (\text{IX-33})$$

où $\pi(t)$ est le vecteur à 2 composantes $\pi_1(t), \pi_2(t)$ solution de :

$$\boxed{\frac{d}{dt} \pi(t) = -C \pi(t)} \quad (\text{IX-34})$$

Les populations réduites $\pi_1(t)$ et $\pi_2(t)$ évoluent donc à partir de leurs ~~valeurs~~ valeurs initiales $\pi_1(0)$ et $\pi_2(0)$ données en (IX-14) avec 2 constantes de temps qui sont les inverses des valeurs propres de C

- Comme, d'après (IX-7), $\Gamma_1 = \Gamma_{11} + \Gamma_{21}$ et $\Gamma_2 = \Gamma_{22} + \Gamma_{12}$, on voit que la somme des lignes de la matrice C définie en (IX-30) est nulle.

Donc C a une valeur propre nulle qui correspond à un régime stationnaire pour $\pi_1(t)$ et $\pi_2(t)$. La somme des 2 valeurs propres de C étant égale à la trace de (IX-30), on en déduit que la valeur propre non nulle de C est $\Gamma_{12} + \Gamma_{21}$.

On en conclut, qu'après un régime transitoire durant un temps de l'ordre de $1/(\Gamma_{12} + \Gamma_{21})$, $\Pi_1(t)$ et $\Pi_2(t)$ passent de leurs valeurs initiales $\Pi_1(0)$ et $\Pi_2(0)$ à leurs valeurs stationnaires $\Pi_1(\infty)$ et $\Pi_2(\infty)$, solutions de l'équation

$$C \Pi(\infty) = 0 \quad (IX-35)$$

- La valeur stationnaire $P_0(n) \Pi_i(\infty)$ vers laquelle tend la population du niveau $|i, n\rangle$ correspond en fait à un "équilibre dynamique". Il y a un transfert incessant de population vers le bas : chaque niveau se vide vers les niveaux inférieurs et est alimenté par les niveaux supérieurs, les gains compensant à chaque instant les pertes. On a un "régime stationnaire de cascade" qui est atteint si le temps T d'observation (temps de traversée du faisceau laser par l'atome) est grand devant $1/(\Gamma_{12} + \Gamma_{21})$.
- Calcul de $\Pi_1(\infty)$ et $\Pi_2(\infty)$

En explicitant (IX-35), on obtient, compte tenu de (IX-30) et du fait que $\Gamma_{1-} \Gamma_{11} = \Gamma_{21}$

$$\Gamma_{21} \Pi_1(\infty) = \Gamma_{12} \Pi_2(\infty) \quad (IX-36)$$

La condition de "bilan détaillé" (IX-36) a une interprétation physique simple (fig. 1)

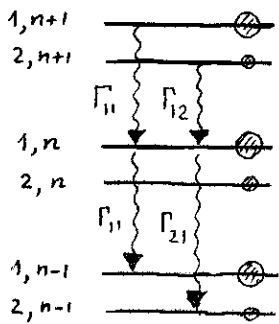


Fig. 1

Étant donné la très grande largeur de $P_0(n)$, on peut considérer que les populations stationnaires sont localement périodiques : $\Pi_{in} \approx \Pi_{i, n+1} \approx \Pi_{i, n-1}$. C'est ce qui exprime la forme (IX-33) de la solution.

Faisons le bilan de population pour $|1, n\rangle$. Ce qui arrive de $|1, n+1\rangle$, $\Gamma_{11} \Pi_1(\infty)$ est exactement compensé par ce qui part de $|1, n\rangle$ vers $|1, n-1\rangle$, $\Gamma_{11} \Pi_1(\infty)$. Le régime stationnaire est donc atteint quand ce qui arrive de $|2, n+1\rangle$, $\Gamma_{12} \Pi_2(\infty)$ est compensé par ce qui part vers $|2, n-1\rangle$, $\Gamma_{21} \Pi_1(\infty)$. On obtient ainsi (IX-36)

Calculons maintenant explicitement $\Pi_1(\infty)$ et $\Pi_2(\infty)$ à partir de (IX-36) et de la condition de normalisation $\Pi_1(\infty) + \Pi_2(\infty) = 1$

D'après (IX-6) et (VIII-5), on a :

$$\Gamma_{12} = \Gamma \sin^4 \varphi \quad \Gamma_{21} = \Gamma \cos^4 \varphi \quad (IX-37)$$

On en déduit, à partir de (IX-36) :

$$\Pi_1(\infty) = \frac{\sin^4 \varphi}{\sin^4 \varphi + \cos^4 \varphi} \quad \Pi_2(\infty) = \frac{\cos^4 \varphi}{\sin^4 \varphi + \cos^4 \varphi} \quad (IX-38)$$

c) Effet des termes négligés.

- Évaluons la correction due au dernier terme de (IX-31) que nous avons négligé. Pour cela, assimilons la dépendance "discrète" en n de $\sigma(n, t)$ à une dépendance continue et remplaçons donc $\sigma(n+1, t) - \sigma(n, t)$ par $\frac{\partial}{\partial n} \sigma(n, t)$.

Le dernier terme de (IX-31) ajoute donc à la vitesse de variation de la composante $\sigma_i(n, t)$ de $\sigma(n, t)$ une contribution égale à

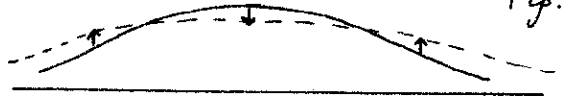
$$\sum_j B_{ij} \frac{\partial}{\partial n} \sigma_j(n, t) \quad (IX-39)$$

D'après (IX-28) et (IX-6), tous les B_{ij} sont positifs ; d'autre part, $\sigma_j(n, t)$ a une dépendance en n voisine de celle de $p_0(n)$ (traits pleins de la figure 2). On en déduit le sens de la vitesse de variations de $\sigma_j(n, t)$ associé au dernier terme de (IX-31) et représenté par les flèches de la figure 2 : > 0 pour les parties croissantes de $\sigma_j(n, t)$, < 0 pour les parties décroissantes, nul au maximum

Fig 2



Fig. 3



Le dernier terme de (IX-31) est donc responsable d'un déplacement de $\sigma_j(n, t)$ vers les faibles valeurs de n (traits tiretés de la fig. 2)

Si l'on avait développé $\sigma_j(n+1, t) - \sigma_j(n, t)$ jusqu'au 2^{ème} ordre, on aurait obtenu un terme supplémentaire, proportionnel à la courbure de $\sigma_j(n, t)$, $\frac{1}{2} B_{ij} \frac{\partial^2}{\partial n^2} \sigma_j(n, t)$, dont le signe est représenté par les flèches de la figure 3 et qui est responsable d'un élargissement de la distribution

Donc, à l'évolution des populations réduites discutées au § 4 ci-dessus, se superpose un déplacement vers le bas et un élargissement de la distribution en n des populations de l'atome battillé.

En conclusion

Les populations $\pi_i n$ partant des valeurs initiales $p_0(n) \pi_i(0)$ tendent après un régime transitoire durant un temps de l'ordre de $1/(\Gamma_{12} + \Gamma_{21})$ vers des valeurs stationnaires $p_0(n) \pi_i(\infty)$.

Le temps T d'observation (temps de traversée du faisceau laser par l'atome) est en général suffisamment long pour que ce régime stationnaire soit atteint.

Au bout d'un temps beaucoup plus long, de l'ordre de \sqrt{n}/Γ (où \sqrt{n} est la largeur de $p_0(n)$), deviendrait sensible une variation de populations due au fait que le mode laser se vide au profit des autres modes.

Remarque

Nous verrons plus loin que les quantités importantes pour le signal sont :

$$p_i = \sum_n \pi_i n \quad (IX-40)$$

En sommant (IX-8) sur n , on voit immédiatement que les p_i satisfont :

$$\frac{d}{dt} p_i = -\Gamma_i p_i + \sum_l \Gamma_{il} p_l \quad (IX-41)$$

que l'on peut écrire matriciellement, compte tenu de (IX-30)

$$\frac{d}{dt} p = -C p \quad (IX-42)$$

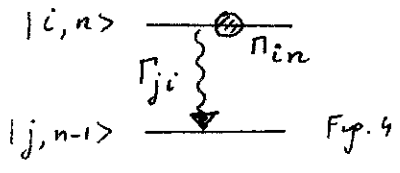
les conditions initiales étant d'après (IX-29) : $p(0) = \pi(0)$.

$p_1(t)$ et $p_2(t)$ satisfont donc aux mêmes équations que les populations réduites introduites dans le § 4 b et ont les mêmes valeurs initiales. Tout ce qui a été dit plus haut sur π_1 et π_2 demeure donc valable pour p_1 et p_2 [en particulier $p_i(\infty) = \pi_i(\infty)$], sans en il soit nécessaire de recourir à l'approximation consistant à négliger le dernier terme de (IX-31).

5) Application : Poids des raies en émission

a) Argument intuitif

Il semble tout à fait plausible que le nombre de photons émis au voisinage de la fréquence $\omega_L + E_i - E_j$ de la transition $|i, n\rangle \rightarrow |j, n-1\rangle$ soit égal au nombre de transitions de l'atome habillé qui s'effectuent à cette fréquence pendant le temps d'observation T . Nous justifierons ultérieurement une telle affirmation. On peut donc écrire (cf figure 4) :



$$J(\omega_L + E_i - E_j) = \int_0^T \sum_n \Gamma_{ji} \Pi_{in}(t) dt$$

$$= \int_0^T \Gamma_{ji} \rho_i(t) dt \quad (IX-43)$$

où les $\rho_i(t)$ ont été introduits en (IX-40).

Si l'on revient au diagramme d'énergie de la 4 page VIII-3, on obtient :

$$\begin{cases} J(\omega_L + \bar{\omega}) = \int_0^T \sum_n \Gamma_{21} \Pi_{1n}(t) dt = \int_0^T \Gamma_{21} \rho_1(t) dt \\ J(\omega_L - \bar{\omega}) = \int_0^T \sum_n \Gamma_{12} \Pi_{2n}(t) dt = \int_0^T \Gamma_{12} \rho_2(t) dt \\ J(\omega_L) = \int_0^T \sum_n \sum_{i=1,2} \Gamma_{ii} \Pi_{in}(t) dt = \int_0^T [\Gamma_{11} \rho_1(t) + \Gamma_{22} \rho_2(t)] dt \end{cases} \quad (IX-44)$$

b) Poids des raies dans le régime stationnaire

Si T est grand devant le temps du régime transitoire $1/(\Gamma_{12} + \Gamma_{21})$, on peut dans (IX-44) remplacer $\Pi_{in}(t)$ par $\rho_0(n) \Pi_i(\infty)$ [ou plus rigoureusement $\rho_i(t)$ par $\rho_i(\infty) = \Pi_i(\infty)$] ce qui donne :

$$\begin{cases} J(\omega_L + \bar{\omega}) = T \Gamma_{21} \Pi_1(\infty) \\ J(\omega_L - \bar{\omega}) = T \Gamma_{12} \Pi_2(\infty) \\ J(\omega_L) = T [\Gamma_{11} \Pi_1(\infty) + \Gamma_{22} \Pi_2(\infty)] \end{cases} \quad (IX-45)$$

On voit en particulier que la condition de bilan détaillé (IX-36) entraîne que

$$J(\omega_L + \bar{\omega}) = J(\omega_L - \bar{\omega}) \quad (IX-46)$$

les 2 raies latérales à $\omega_L + \bar{\omega}$ et $\omega_L - \bar{\omega}$ ont donc même poids. Nous verrons plus loin qu'elles ont même largeur, ce qui montre que le spectre est symétrique. L'interprétation physique de (IX-46) est la même que celle développée à propos de la fig 1. Lorsqu'on tient compte du régime transitoire, l'égalité (IX-46) n'est évidemment plus valable.

Quand on utilise les expressions (IX-37) et (IX-38) et les égalités $\Gamma_{11} = \Gamma_{22} = \Gamma \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi$ déduites de (VIII-5) et (IX-6), on obtient à partir de (IX-45)

$$\begin{cases} J(\omega_L + \bar{\omega}) = \Gamma T \frac{\sin^4 \varphi \cos^4 \varphi}{\sin^4 \varphi + \cos^4 \varphi} = J(\omega_L - \bar{\omega}) \\ J(\omega_L) = \Gamma T \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi \end{cases} \quad (IX-47)$$

L'émission spontanée d'un système à 2 niveaux irradié par un laser résonnant intense.

E. Evolution des éléments non-diagonaux de la matrice densité

Dans ce §, on explicite l'équation pilote (VIII-21) pour les éléments non-diagonaux de la matrice densité de l'atome habillé.

On interprète physiquement ces équations, en particulier les termes décrivant les transferts radiatifs, et on en déduit très simplement les largeurs des diverses composantes des spectres de fluorescence.

① Notations

- On pose $\langle i, n | \sigma(t) | j, n-p \rangle = \sigma_{ij, n}^p(t)$ (X-1)

- On s'intéressera surtout :

(i) aux cohérences basse fréquence $p=0$ $\sigma_{i2n}^0(t)$
car elles interviennent dans l'intensité totale de la lumière émise.

(ii) aux cohérences optiques $p=1$ $\sigma_{ij, n}^+(t)$
car elles interviennent dans la valeur moyenne du dipôle atomique :

$$\langle D \rangle = \sum_{i, j, n} \sigma_{ij, n}^+(t) d_{ji} + c.c. \quad (X-2)$$

② Equations d'évolution.

On repart de l'équation pilote VIII-21 (en supposant valable l'approximation VIII-18 des vitesses de variation indépendantes) et on la projette entre $\langle i, n |$ et $| j, n-p \rangle$.

a. Termes d'amortissement

$$-\frac{1}{2} \langle i, n | \{ D^+ D^-, \sigma(t) \}_+ | j, n-p \rangle \quad (X-3)$$

Par suite de l'approximation séculaire (condition VIII-22), il suffit de conserver dans (X-3), les termes en $\sigma_{ij, n}^p(t)$, ce qui donne finalement pour (X-3) :

$$-\frac{1}{2} (\Gamma_i + \Gamma_j) \sigma_{ij, n}^p(t) \quad (X-4)$$

On trouve que le temps d'amortissement de $\sigma_{ij, n}^p(t)$ est la demi-somme des temps d'amortissement Γ_i et Γ_j des 2 niveaux de l'atome habillé $| i, n \rangle$ et $| j, n-p \rangle$ reliés par σ .

b. Termes de transfert

$$\langle i, n | D^- \sigma(t) D^+ | j, n-p \rangle \quad (X-5)$$

Par suite de l'approximation séculaire, il ne faut retenir que les couplages de $\langle i, n | \sigma(t) | j, n-p \rangle$ avec des éléments de matrice de σ , $\langle k, n+1 | \sigma(t) | l, n-p+1 \rangle$ évoluant à la même fréquence.

Il y a alors 2 cas à envisager :

(i) Ou bien $i \neq j$, auquel cas le seul couplage non seculaire associé à (X-5) correspond à $k=i$ et $l=j$ (cas non-dégénéré).

$\sigma_{ij,n}^P$ est couplé à $\sigma_{ij,n+1}^P$, le coefficient de couplage étant :

$$\langle i,n | D^- | i,n+1 \rangle \langle j,n-p+1 | D^+ | j,n-p \rangle = d_{ii} d_{jj} \quad (X-6)$$

Exemples

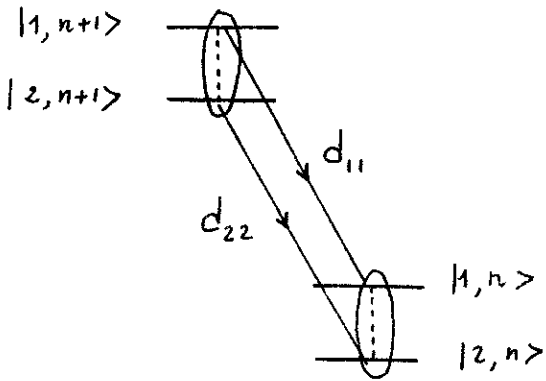


Fig 1 : Transfert entre cohérences barre fréquence évoluant à $\bar{\omega}$

$$\sigma_{12,n+1}^0(t) \xrightarrow{d_{11} d_{22}} \sigma_{12,n}^0(t)$$

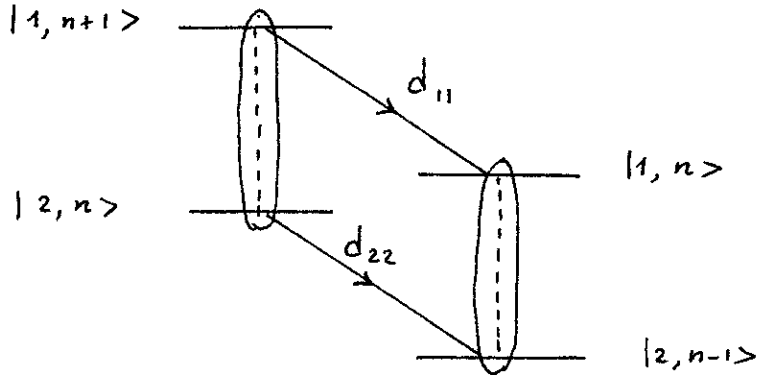


Fig 2 : Transfert entre cohérences optiques évoluant à $\omega_2 + \bar{\omega}$

$$\sigma_{12,n+1}^+(t) \xrightarrow{d_{11} d_{22}} \sigma_{12,n}^+(t)$$

(ii) Ou bien $i = j$, auquel cas $\sigma_{ii,n}^P(t)$ est couplé à $\sigma_{11,n+1}^P(t)$ et $\sigma_{22,n+1}^P(t)$ (cas dégénéré).

Exemple

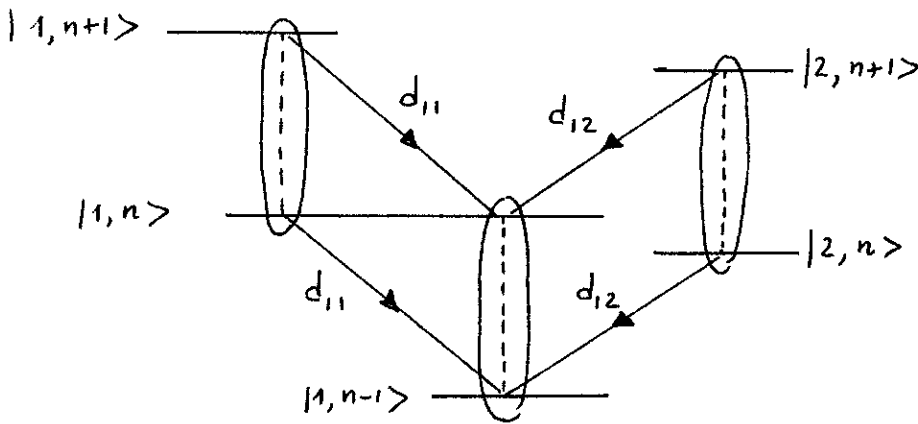


Fig.3 : Transfert entre cohérences optique évoluant à $\bar{\omega}_2$.

$$\begin{aligned} \sigma_{11,n+1}^+(t) &\xrightarrow{d_{11} d_{11} = \Gamma_{11}} \sigma_{11,n}^+(t) \\ \sigma_{22,n+1}^+(t) &\xrightarrow{d_{12} d_{12} = \Gamma_{12}} \sigma_{11,n}^+(t) \end{aligned}$$

Donc, par suite de la périodicité du diagramme d'énergie, il y a des couplages par transfert radiatif entre éléments non diagonaux évoluant

à la même fréquence. L'oubli de ces termes de transfert conduirait à des conclusions tout à fait erronées sur les constantes de temps d'amortissement du dipôle atomique, et par suite sur la largeur des raies des spectres d'émission.

c - Evolution propre

$$\frac{d}{dt} \sigma_{ij}^P(t) = -i [E_i - E_j + p\omega_L] \sigma_{ij}^P(t) \tag{X-7}$$

d Récapitulation

$i \neq j$

$$\frac{d}{dt} \sigma_{ij}^P(t) = -\frac{1}{2}(\Gamma_i + \Gamma_j) \sigma_{ij}^P(t) + d_{ij} d_{j, n+1} \sigma_{ij, n+1}^P(t) - i(E_i - E_j + p\omega_L) \sigma_{ij}^P(t) \tag{X-8}$$

$i = j$

$$\frac{d}{dt} \sigma_{ii}^P(t) = -\Gamma_i \sigma_{ii}^P(t) + \sum_{j=1,2} \Gamma_{ij} \sigma_{jj, n+1}^P(t) - i p \omega_L \sigma_{ii}^P(t) \tag{X-9}$$

③ Conditions initiales.

- Comme dans le § D-2, on suppose une entrée soudaine dans le faisceau laser de l'atome (dans l'état inférieur a)

$$|\psi(0)\rangle = |a\rangle \otimes \sum_n c_n |n\rangle \tag{X-10}$$

$$c_n = e^{-|\alpha|^2/2} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} \tag{X-11}$$

$$\alpha = |\alpha| e^{i\theta} \tag{X-12}$$

$$|c_n|^2 = P_0(n) \tag{X-13}$$

θ : phase du champ laser.

- Matrice densité initiale

$$\sigma_{ij}^P(0) = \langle i, n | \psi(0) \rangle \langle \psi(0) | j, n-p \rangle = \sum_{n', n''} \langle i, n | a, n' \rangle \langle a, n'' | j, n-p \rangle c_{n'} c_{n''}^* \tag{X-14}$$

D'après les expressions des états $|i, n\rangle$ (voir figure 4 page VIII-3), il faut dans la somme précédente prendre $n' = n+1$, $n'' = n-p+1$ et éliminer

$$\langle 1, n | a, n+1 \rangle = \sin \varphi \quad \langle 2, n | a, n+1 \rangle = \cos \varphi \tag{X-14}$$

où l'angle φ est défini en (VIII-2).

D'autre part, si p n'est pas trop grand

$$c_{n+1} c_{n-p+1}^* \approx |c_{n+1}|^2 e^{i p \theta} \approx P_0(n) e^{i p \theta} \tag{X-15}$$

de sorte que finalement on peut écrire

$$\sigma_{ij}^P(0) = P_0(n) e^{i p \theta} \rho_{ij}(0) \tag{X-16}$$

$$\text{ou } \rho_{ij}(0) = \langle i, n | a_{,n+1} \rangle \langle a_{,n-p+1} | j, n-p \rangle \quad (X-17) \quad \overline{X-4}$$

est donné par la matrice 2×2

$$\rho_{ij}(0) = \begin{pmatrix} \sin^2 \varphi & \sin \varphi \cos \varphi \\ \sin \varphi \cos \varphi & \cos^2 \varphi \end{pmatrix} \quad (X-18)$$

④ Résolution des équations d'évolution.

a) Cas non dégénéré ($i \neq j$)

Comme dans le § D-4, récrivons l'équation (X-8) sous la forme :

$$\frac{d}{dt} \sigma_{ijn}^P(t) = \left[-\frac{1}{2}(\Gamma_i + \Gamma_j) + d_{ii}d_{jj} \right] \sigma_{ijn}^P(t) + d_{ii}d_{jj} [\sigma_{ijn+1}^P(t) - \sigma_{ijn}^P(t)] - i[E_i - E_j + p\omega_L] \sigma_{ijn}^P(t) \quad (X-19)$$

On a ajouté et retranché $d_{ii}d_{jj} \sigma_{ijn}^P(t)$.

Comme la dépendance en n de $\sigma_{ijn}^P(t)$ est très large (largeur de l'ordre de \sqrt{n} , comme $p_0(n)$), le 2^{ème} terme de (X-19), $d_{ii}d_{jj} [\sigma_{ijn+1}^P - \sigma_{ijn}^P]$ est beaucoup plus petit que les 2 autres, par un facteur de l'ordre de $1/\sqrt{n}$ et, comme dans le § D-4, nous le négligeons.

On obtient alors immédiatement la solution de l'équation (X-19) :

$$\text{Si } i \neq j \quad \sigma_{ijn}^P(t) = \sigma_{ijn}^P(0) e^{-i[p\omega_L + E_i - E_j]t} e^{-L_{ij}t} \quad (X-20)$$

$$\text{ou } \boxed{L_{ij} = \frac{1}{2}(\Gamma_i + \Gamma_j) - d_{ii}d_{jj}} \quad (X-21)$$

L_{ij} Une cohérence non dégénérée ($i \neq j$) s'amortit donc avec un taux qui n'est pas simplement la demi-somme de Γ_i et Γ_j mais qui est corrigé par le terme $-d_{ii}d_{jj}$ associé aux transferts radiatifs des figures 1 et 2.

Remarques

(i) Nous avons supposé implicitement d_{ii} et d_{jj} réels. Sinon, il faudrait séparer dans (X-21) les parties réelle et imaginaire de cette quantité, la partie imaginaire venant corriger la fréquence d'évolution $p\omega_L + E_i - E_j$ de σ_{ijn}^P .

(ii) On peut, à partir de l'inégalité de Schwarz, montrer que $L_{ij} \geq 0$, c-à-d que la cohérence σ_{ijn}^P s'amortit par émission spontanée et ne s'amplifie jamais.

b) Cas dégénéré ($i = j$)

- En ajoutant et en retranchant à l'équation X-9 $\sum_j \Gamma_{ij} \sigma_{jjn}^P$, puis en négligeant le terme $\sum_j \Gamma_{ij} [\sigma_{jjn+1}^P - \sigma_{jjn}^P]$ qui apparaît alors et qui est environ $1/\sqrt{n}$ fois plus petit que les autres, on obtient pour les 2 cohérences dégénérées σ_{iin}^P ($i=1,2$) le système d'équations :

$$\frac{d}{dt} \sigma_{iin}^P(t) = -\Gamma_i \sigma_{iin}^P(t) + \sum_j \Gamma_{ij} \sigma_{jjn}^P(t) - ip\omega_L \sigma_{iin}^P(t) \quad (X-22)$$

que l'on peut réécrire, en introduisant le vecteur $\sigma_n^P(t)$ à 2 composantes σ_{11n}^P et σ_{22n}^P et en utilisant la matrice C introduite en (IX-30) :

$$\frac{d}{dt} \sigma_n^P(t) = - C \sigma_n^P(t) - i p \omega_L \sigma_n^P(t) \quad (X-23)$$

- Au terme d'évolution propre près $-i p \omega_L \sigma_n^P$ [dont on pourrait d'ail- leurs se débarrasser en changeant de variables : $\tilde{\sigma}_n^P = \sigma_n^P e^{i p \omega_L t}$], on obtient donc le même système d'équations que pour les 2 populations π_{1n} et π_{2n} étudiés dans le § D-4 [comparez X-23 et IX-32]

Les résultats concernant l'évolution des cohérences dégénérées σ_{11n}^P et σ_{22n}^P sont donc, à l'évolution propre près, très analogues à ceux concernant les populations $\pi_{1n}(t)$ et $\pi_{2n}(t)$ des niveaux $|1, n\rangle$ et $|2, n\rangle$. Deux taux d'amortissement apparaissent dans l'évolution de σ_{11n}^P et σ_{22n}^P , qui sont les valeurs propres de la matrice 2×2 C . Nous avons vu dans le § D que l'une de ces valeurs propres est nulle, l'autre égale à $\Gamma_{12} + \Gamma_{21}$.

Donc, après un régime transitoire durant un temps égal à $1 / (\Gamma_{12} + \Gamma_{21})$, les cohérences σ_{11n}^P et σ_{22n}^P tendent vers des régimes d'oscillation forcée à la fréquence $p \omega_L$.

- Connaissant la solution stationnaire des équations (IX-32), on peut très simplement en déduire celle des équations (X-23)

Il suffit de comparer les conditions initiales. Pour les équations (IX-32), on partait de $\pi_{in}(0) = P_0(n) \pi_i(0)$ avec $\pi_1(0) = \sin^2 \varphi$ et $\pi_2(0) = \cos^2 \varphi$ [cf IX-14] et on aboutissait en régime stationnaire à $\pi_{in}(\infty) = P_0(n) \pi_i(\infty)$ où $\pi_1(\infty)$ et $\pi_2(\infty)$ sont donnés en (IX-38) Ici, on part de $\sigma_{iin}^P(0) = P_0(n) e^{i p \theta} \rho_{ii}(0)$ où, d'après (X-18), $\rho_{11}(0) = \sin^2 \varphi$, $\rho_{22}(0) = \cos^2 \varphi$. On en déduit que, pour t suffisamment grand (devant $1 / (\Gamma_{12} + \Gamma_{21})$), on a :

$$\begin{cases} \sigma_{11n}^P(t) = P_0(n) e^{i p \theta} \pi_1(\infty) e^{-i p \omega_L t} \\ \sigma_{22n}^P(t) = P_0(n) e^{i p \theta} \pi_2(\infty) e^{-i p \omega_L t} \end{cases} \quad (X-24)$$

Les seules différences avec $\pi_{1n}(t)$ et $\pi_{2n}(t)$ proviennent de $e^{i p \theta}$ (conditions initiales) et de $e^{-i p \omega_L t}$ (évolution propre)

- Si l'on prend $p=1$, les solutions forcées (X-24) permettent de calculer entièrement le mouvement forcé à la fréquence ω_L du dipôle atomique sous l'effet de l'interaction avec l'onde laser cohérente incidente.

5) Application : largeur des raies en émission.

a) Argument intensité.

Il semble tout à fait plausible que la largeur d'une composante du spectre de fluorescence soit égale au taux d'amortissement de la composante du dipôle atomique oscillant à la fréquence correspondante. Ce résultat sera établi plus tard de manière rigoureuse.

Comme $\langle D \rangle$ est, d'après (X-2), proportionnel à $\sigma_{ij}^+(t)$ ($p=1$), il suffit d'étudier les taux d'amortissement des cohérences $\sigma_{ij}^+(t)$.

b) Largeur des raies latérales en $\omega_L + \bar{\omega}$ et $\omega_L - \bar{\omega}$

- Les composantes correspondantes du dipôle sont proportionnelles à $\sigma_{12n}^+(t)$ et $\sigma_{21n}^+(t)$ (cas non dégénéré).

Comme $\sigma_{12n}^+(t)$ et $\sigma_{21n}^+(t)$ sont amortis avec un taux L_{12} (d'après X-21, $L_{12} = L_{21}$), on en déduit que les 2 raies latérales en $\omega_L + \bar{\omega}$ et $\omega_L - \bar{\omega}$ ont même largeur, égale à L_{12} . Comme d'après (IX-46), elles ont aussi même poids, on en déduit que le spectre est symétrique.

- En utilisant les expressions (IX-37) de Γ_{12} et Γ_{21} , les expressions $\Gamma_{11} = \Gamma_{22} = \Gamma \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi$ déduites de VIII-5 et IX-6, les expressions VIII-5 des d_{ij} , on déduit

$$\Gamma_1 = \Gamma \cos^2 \varphi \quad \Gamma_2 = \Gamma \sin^2 \varphi \quad (\text{X-25})$$

$$d_{11} d_{22} = -\Gamma \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi \quad (\text{X-26})$$

et par suite

$$L_{12} = \Gamma \left(\frac{1}{2} + \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi \right) \quad (\text{X-27})$$

c) Structure de la raie centrale en ω_L

- La composante du dipôle oscillant à ω_L est une combinaison linéaire de σ_{11n}^+ et σ_{22n}^+ .

Comme le moment de σ_{11n}^+ et σ_{22n}^+ fait, d'après les résultats du § E4 précédent, apparaître 2 composantes de même fréquence ω_L , mais de taux d'amortissement différents, 0 et $\Gamma_{12} + \Gamma_{21}$, on en déduit que la raie centrale est la superposition d'une composante de largeur nulle (composante centrale élastique) et d'une composante de largeur $\Gamma_{12} + \Gamma_{21}$ (composante centrale inélastique).

- On peut calculer aisément les poids respectifs des composantes centrale élastique et centrale inélastique.

(i) Nous verrons plus tard que le spectre de la lumière de fluorescence est donné par la transformée de Fourier de la fonction de corrélation du dipôle atomique :

$$L_F(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_0^T dt \int_0^T dt' e^{-i\omega(t-t')} \langle D^+(t) D^-(t') \rangle \quad (X-28) \quad \boxed{X-7}$$

En intégrant (X-28) sur ω , on fait apparaître une fonction $\delta(t-t')$ ce qui donne pour l'intensité totale de la lumière émise :

$$I = \int_0^T dt \langle D^+(t) D^-(t) \rangle \quad (X-29)$$

En explicitant (X-29) et en utilisant le fait que seules les populations stationnaires sont non nulles dans (X-29) [les cohérences basse fréquence tendent, d'après (X-20), vers 0 en un temps court devant le temps de transit T de l'atome dans le faisceau laser], on obtient

$$I = \sum_i \sum_j \sum_n \int_0^T P_0(n) \Pi_i(t) \Gamma_{ji} \approx \sum_i \sum_j T \Gamma_{ji} \Pi_i(\infty) \quad (X-30)$$

On obtient ainsi le même résultat que celui obtenu en ajoutant les poids de toutes les raies $J(\omega_i)$, $J(\omega_i + \bar{\omega})$, $J(\omega_i - \bar{\omega})$ calculés en (X-45).

(ii) Pour faire apparaître la composante élastique dans (X-28), il suffit d'écrire

$$D^+(t) = \langle D^+(t) \rangle + \underbrace{D^+(t) - \langle D^+(t) \rangle}_{\delta D^+(t)} \quad (X-31)$$

et une formule analogue pour $D^-(t')$, c.-à-d. de séparer dans le mouvement du dipôle, la valeur moyenne $\langle D^+(t) \rangle$, et la fluctuation $\delta D^+(t) = D^+(t) - \langle D^+(t) \rangle$ par rapport à la valeur moyenne.

On obtient alors en reportant (X-31) dans (X-28) :

$$L_F(\omega) = \frac{1}{2\pi} \left| \int_0^T dt \langle D^-(t) \rangle e^{i\omega t} \right|^2 + \frac{1}{2\pi} \int_0^T dt \int_0^T dt' e^{-i\omega(t-t')} \langle \delta D^+(t) \delta D^-(t') \rangle \quad (X-32)$$

Le 1^{er} terme de (X-32) représente la lumière rayonnée par le dipôle moyen mis en résonance par l'onde incidente : diffusion élastique de largeur nulle, ou plutôt de largeur égale à la largeur d'incertitude $1/T$. Le 2nd terme de (X-32) représente l'ensemble de la partie inélastique du spectre (composante centrale inélastique + composantes latérales).

Le raisonnement précédent montre donc finalement qu'avec les mêmes coefficients de normalisation que ceux apparaissant en (X-45), la raie élastique centrale est donnée par

$$\frac{1}{2\pi} \left| \int_0^T dt \langle D^-(t) \rangle e^{i\omega t} \right|^2 \quad (X-33)$$

Or

$$\langle D^-(t) \rangle = \sum_{i,j,n} \langle j, n-1 | D^- | i, n \rangle \langle i, n | \sigma(t) | j, n-1 \rangle \quad (X-34)$$

Comme, en régime forcé, les cohérences dégénérées σ_{ii}^+ sont seules à être non nulles (voir X-20 et X-24) on en déduit en régime forcé

$$\langle D^-(t) \rangle = \sum_{i,n} d_{ii} \sigma_{ii}^+(t) \quad (X-35)$$

c.-à-d. encore d'après (X-24) :

$$\langle D^-(t) \rangle = e^{i\theta} e^{-i\omega_L t} [d_{11} \Pi_1(\infty) + d_{22} \Pi_2(\infty)] \quad (X-36)$$

- Finalement, en reportant (X-36) dans (X-33), on obtient pour le poids de la raie centrale élastique J_{el}

$$J_{el} = T [d_{11} \pi_1(\infty) + d_{22} \pi_2(\infty)]^2 \quad (X-37)$$

ce qui compte tenu des expressions VIII-5 des d_{ij} et (IX-38) des $\pi_i(\infty)$ donne

$$J_{el} = \Gamma T \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi \left(\frac{\cos^4 \varphi - \sin^4 \varphi}{\cos^4 \varphi + \sin^4 \varphi} \right)^2 \quad (X-38)$$

- Comme on connaît d'après (IX-47) le poids total de la raie centrale (élastique + inélastique), on en déduit le poids de la raie centrale inélastique J_{inel}^c

$$J_{inel}^c = J(\omega_L) - J_{el} = 4 \Gamma T \frac{\sin^6 \varphi \cos^6 \varphi}{(\cos^4 \varphi + \sin^4 \varphi)^2} \quad (X-39)$$

⑥ Récapitulation des résultats sur le spectre de fluorescence.

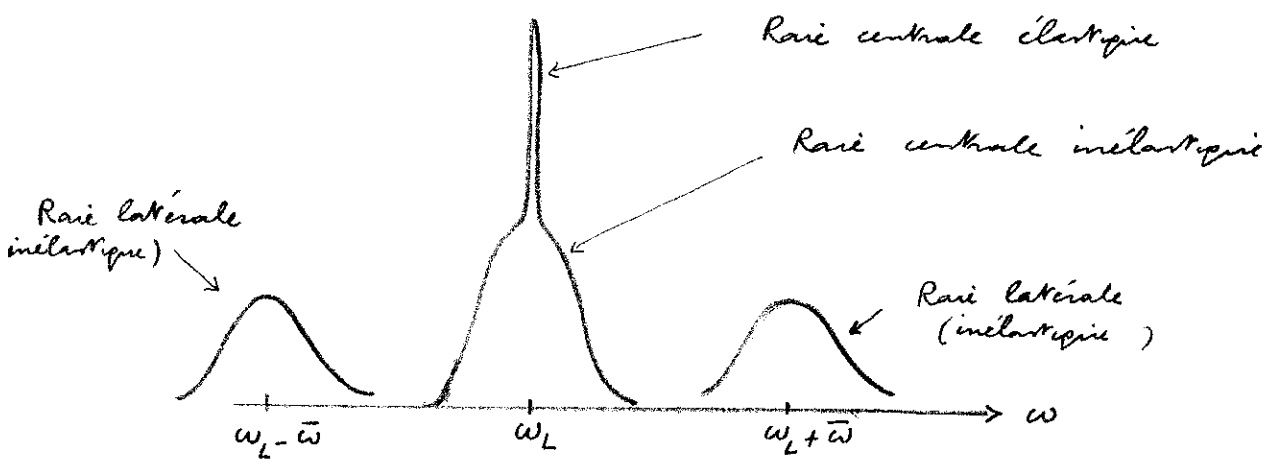


Fig. 4

Le traitement par la méthode de l'atome habillé permet donc en conclusion à la limite $\bar{\omega} \gg \Gamma$ (c-à-d à la limite des raies bien séparées) de préciser entièrement le spectre de fluorescence. On obtient

- 2 raies latérales
 - position $\omega_L + \bar{\omega}$ et $\omega_L - \bar{\omega}$
 - poids $\Gamma T \frac{\sin^4 \varphi \cos^4 \varphi}{\sin^4 \varphi + \cos^4 \varphi}$
 - largeur $\Gamma \left[\frac{1}{2} + \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi \right]$
- 1 raie centrale élastique de poids $\Gamma T \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi \left(\frac{\cos^4 \varphi - \sin^4 \varphi}{\cos^4 \varphi + \sin^4 \varphi} \right)^2$
- 1 raie centrale inélastique.
 - largeur: $\Gamma (\sin^4 \varphi + \cos^4 \varphi)$
 - poids $4 \Gamma T \frac{\sin^6 \varphi \cos^6 \varphi}{(\cos^4 \varphi + \sin^4 \varphi)^2}$

Bibliographie (non exhaustive)

X-9

- Etudes expérimentales

F. Schuda, C.R. Stroud and M. Hercher J. Phys. B7, L198 (1974)

H. Walther - Proceedings of the 2nd Laser Spectroscopy Conference
Meyre June 1975 ed. S. Haroche, J.C. Pchay-Peyronla, T. W.
Hansch and S.H. Harris Springer Verlag 1975 p. 358

W. Harty, W. Rasmussen, R. Schneider, et H. Walther Z. Phys A278, 205 (1976)

F.Y. Wu, R.E. Grove, S. Ezekiel Phys. Rev. Lett. 35, 1526 (1975)

R.E. Grove, F.Y. Wu and S. Ezekiel Phys. Rev. 1977 à paraitre

H.M. Gibbs and T.N.C. Venkatesan - I.E.E.E. J. Quant. Electronics
11, 91 D (1975)

- Etudes théoriques

B.R. Mollow Phys. Rev. 188, 1969 (1969)

G. Olivier, E. Ressayre, A. Tallet Lettère al Nuovo Cimento 2, 777 (1971)

H.J. Carmichael and D.F. Walls J. Phys. B8, L77 (1975)

J. Phys. B9, 1199 (1975)

H.J. Kimble and L. Mandel Phys. Rev. A13, 2123 (1976)

S.S. Hansard and R.K. Bullough J. Phys. B8 L157 (1975)

B. Renaud, R.M. Whitley, and C.R. Stroud Jr J. Phys. B9, L19 (1976)

S. Swain J. Phys. B8, L437 (1975)

C. Cohen-Tannoudji Proceedings 2nd Laser Spectroscopy Conference
cité plus haut p. 324

- Approche Atome habillé

C. Cohen-Tannoudji Frontiers in Laser Spectroscopy, Ecole
d'Eté des Hautes, 1975, semon 27, éditeurs R. Salvan
S. Haroche et S. Liberman North Holland 1977

C. Cohen-Tannoudji et S. Reynaud J. Phys. B10, 345 (1977)

S. Reynaud Thèse 3^{ème} Cycle Paris 1977

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 sur, 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

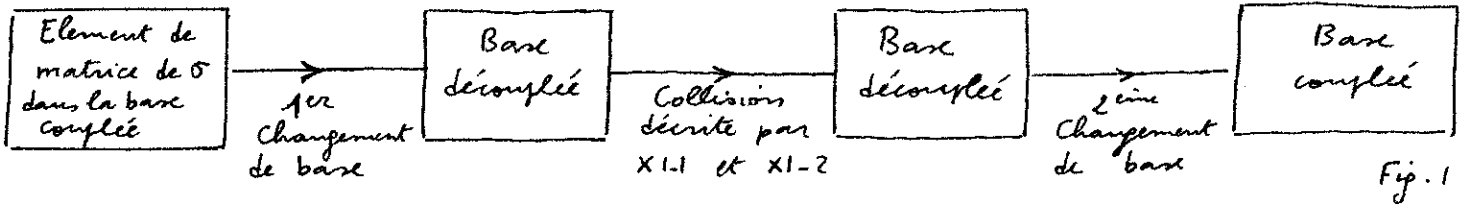


Fig. 1

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 $\text{tg } 2\varphi(v) = \omega_1 / [\omega_0 - \omega_L(v)]$.

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

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

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 directe b-c).
- 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)

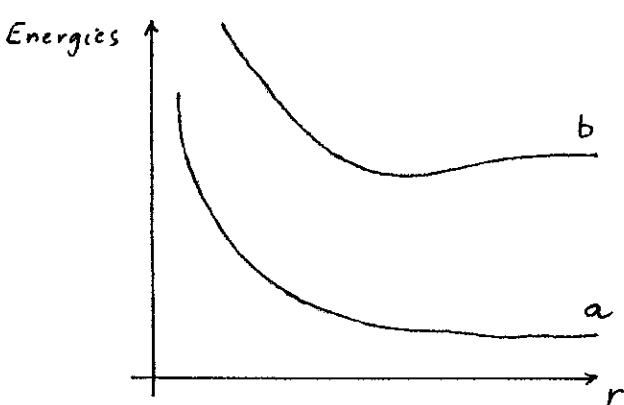


Fig. 5

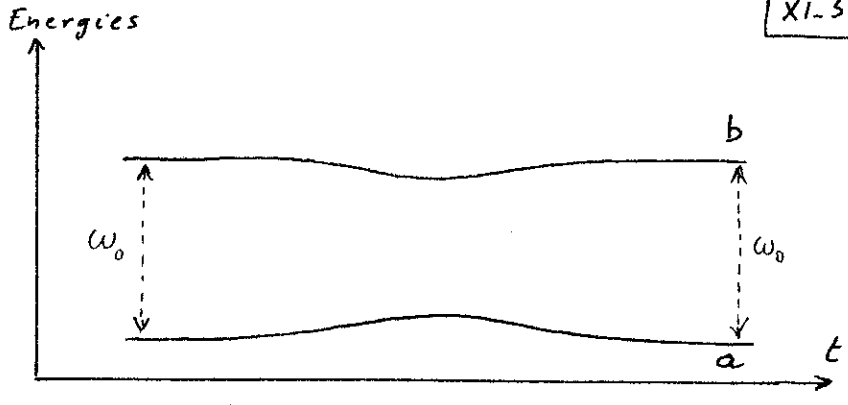


Fig. 6

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}

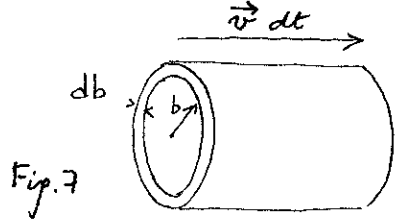


Fig. 7

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)

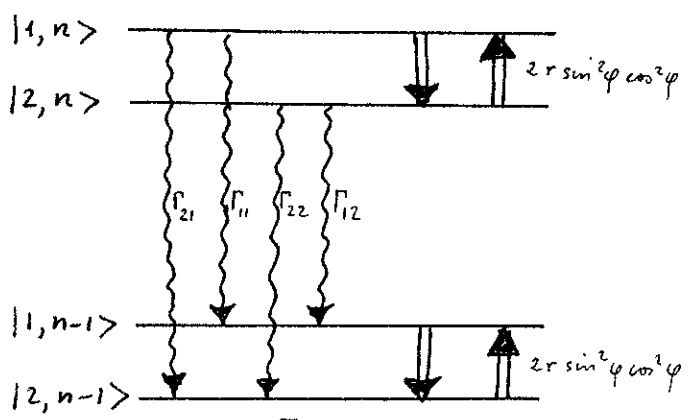


Fig. 8

- 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.

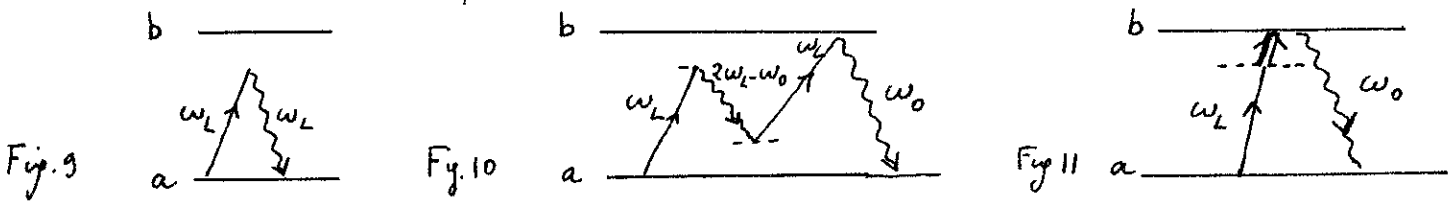
- Supposons le désaccord $|\omega_0 - \omega_L|$ grand devant la largeur Doppler Δ mais petit devant $1/\tau_c$.

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

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 correspondantes du spectre de fluorescence ont même intensité.



- 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 $\tan 2\varphi \approx 2\varphi \approx \frac{\omega_1}{\omega_0 - \omega_L}$ et par suite $\cos \varphi \approx 1$, $\sin \varphi \approx \frac{\omega_1}{2(\omega_0 - \omega_L)}$, de sorte que

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

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

[XII-1]

Aperçu sur l'effet des collisions

en présence d'irradiation laser résonnante intense (suite)

D - Quelques résultats expérimentaux

J.L. CARLSTEN, A. SZÖKE P.R. Lett (1976), 36, 667 ; J. Phys. B 9, L231, (1976)
 J.L. CARLSTEN, A. SZÖKE, M.G. RAYMER, 1977 à paraître.

But de l'expérience

- Observer la fluorescence consécutrice à l'excitation d'une vapeur de Sr par un pulse laser à ω_L en présence de collisions avec des atomes d'argon.
- Etude des intensités des 3 raies en $\omega_0, \omega_L, 2\omega_L - \omega_0$ en fonction de l'intensité du laser, du désaccord $\delta = \omega_0 - \omega_L$, de la pression de gaz étranger.
- En déduire la "fonction de redistribution collisionnelle" (efficacité des processus de collisions qui, avec une excitation à ω_L , font apparaître ω_0).

Quelques résultats

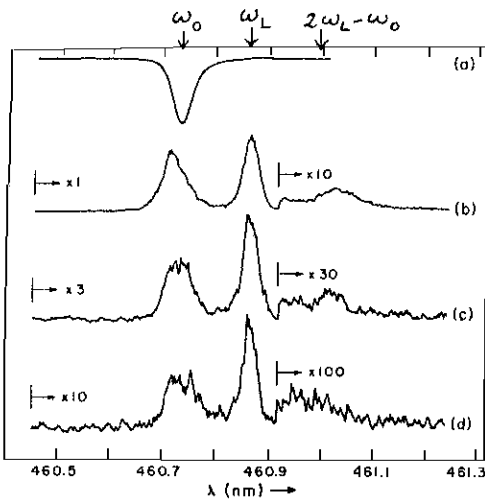


FIG. 1. (a) Absorption profile of the Sr. atomic resonance at 460.73 nm. The other traces show spectral scans of the side emission with the laser attenuated by (b) 0.0, (c) 0.45, and (d) 1.0 neutral density filters. The factors show the increase in sensitivity.

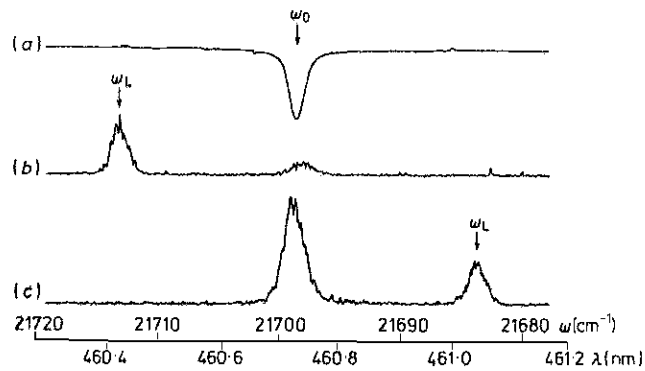


Figure 2 (a) Absorption profile showing the location of the resonance at 460.73 nm ($\omega_0 = 21698.5 \text{ cm}^{-1}$). (b) Emission with the laser tuned to 460.42 nm ($\omega_L = 21713.1$, $\delta = -14.6 \text{ cm}^{-1}$). (c) Emission with the laser tuned to 461.04 nm ($\omega_L = 21683.9$, $\delta = 14.6 \text{ cm}^{-1}$). The Rayleigh scattering, but not the collision-induced fluorescence, is symmetric with detuning δ .

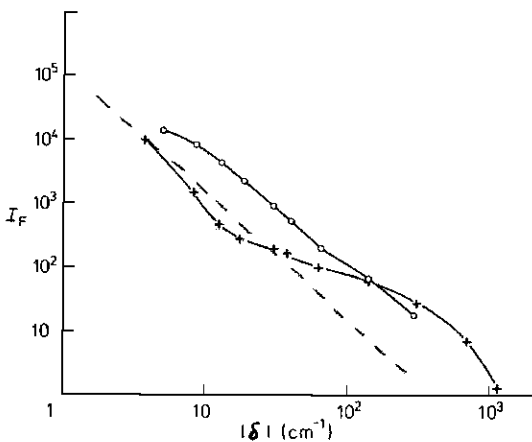


Fig. 3 Intensité de la fluorescence à ω_0 en fonction de désaccord δ . La droite en traits répliqués représente la variation en δ^{-2} prévue par la théorie d'impact (résultats corrigés de la diffusion multiple) qui est valable pour $|\delta| < 4.5 \text{ cm}^{-1}$.
 + points correspondant à $\delta < 0$ ($\omega_L > \omega_0$)
 o " " " $\delta > 0$ ($\omega_0 > \omega_L$)

- La figure 1 montre clairement, qu'en présence de collisions, le spectre de fluorescence n'est plus symétrique. Conformément aux résultats du § C5, la raie en ω_0 est plus intense que la raie en $2\omega_L - \omega_0$.
- le résultat de la théorie d'impact est que l'intensité de la fluorescence à ω_0 dépend pas du signe de δ (voir par exemple XI-29). La figure 2 montre que pour $|\delta| = 14.6 \text{ cm}^{-1}$ la théorie d'impact n'est plus valable, puisque la fluorescence à ω_0 est beaucoup plus intense pour $\delta = +14.6 \text{ cm}^{-1}$ que pour $\delta = -14.6 \text{ cm}^{-1}$.
- La figure 3 montre comment cet effet évolue quand $\delta \nearrow$.
- Ces 2 derniers résultats incitent à étudier ce qui se passe en dehors de la limite d'impact.

E. Aperçu sur ce qui se passe en dehors du régime d'impact
 (grands désaccords : $|\omega_0 - \omega_L| T_c \gg 1$)

Pour simplifier, on considère, comme en C, des collisions purement élastiques.

① Idee générale du calcul

(i) Il est nécessaire maintenant de tenir compte de l'interaction atome-laser pendant le temps de collision.

Cette interaction, négligée jusqu'ici pendant le temps T_c , est caractérisée par l'infinitésimal $\omega_1 T_c$.

Or, la probabilité de transition $|2, n\rangle \rightarrow |1, n\rangle$, calculée dans le régime d'impact, est caractérisée par l'infinitésimal $\frac{\omega_1}{\delta}$ (voir XI-23)

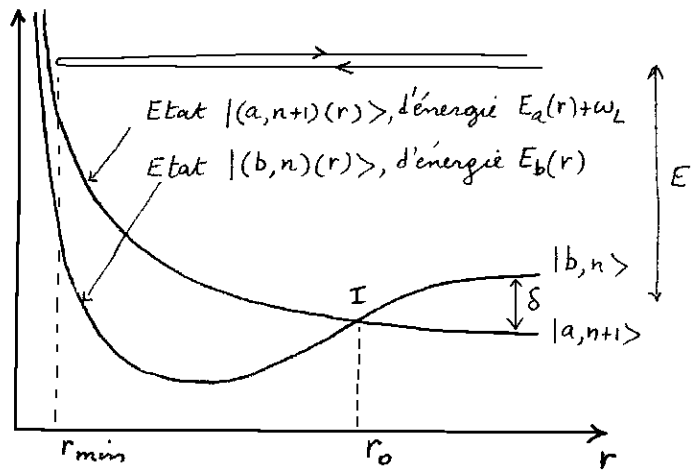
Lorsque $\delta T_c \gg 1$, il ne serait pas logique de conserver des termes en ω_1 / δ et de négliger des termes en $\omega_1 T_c$ qui sont plus grands.

(ii) Mécanisme physique permettant l'excitation de l'atome.

La fig. 4 représente les énergies des états propres de l'hamiltonien $H_0(r)$ du système atome-mode laser n'interagissant pas en fonction de la distance r entre l'atome et le perturbateur.

Pour une certaine valeur de r , r_0 , les énergies des états $|b, n\rangle(r)$ et $|a, n+1\rangle(r)$ se croisent, ce qui exprime que la présence du perturbateur peut rendre résonnante l'irradiation laser (en déplaçant les énergies de a et b de manière à rendre ω_0 égal à ω_L) et permettre ainsi à l'atome dans a d'absorber un photon.

Fig. 4



r_0 dépend bien sûr du désaccord δ (distance entre les 2 courbes pour r grand). Si l'on change le signe de δ , les 2 courbes de la fig. 4 ne se croisent plus. On a ainsi un mécanisme d'excitation dépendant du signe de δ .

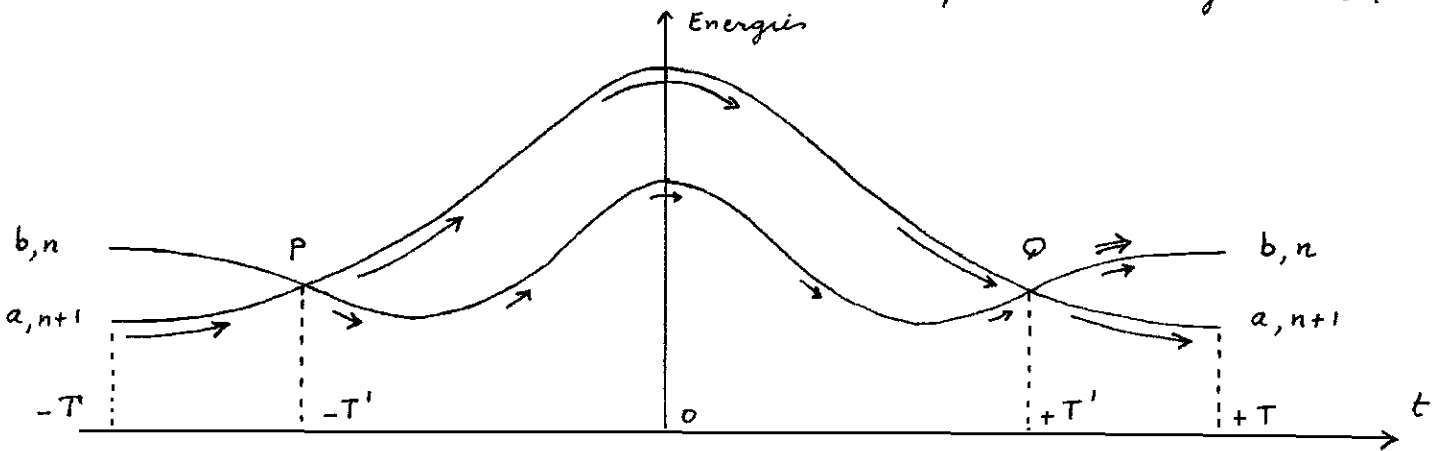


Fig. 5

Comme dans C, on considère des trajectoires rectilignes classiques. Au cours d'une collision, r varie au cours du temps, en diminuant de $+\infty$ à r_{min} (voir fig. 4) puis en croissant de r_{min} à $+\infty$ (il faudrait rajouter le potentiel centrifuge sur la figure 4).

La fig. 5 représente la variation temporelle correspondante des énergies des états du système atome-laser sans interaction. L'instant où $r = r_{min}$ est pris pour origine des temps. $2T$ est un ordre de grandeur des temps de collision. Le croisement de la figure 4 est traversé 2 fois : à l'aller (point P de la fig. 5) quand l'atome et le perturbateur se rapprochent, au retour (point Q) quand ils s'éloignent.

L'effet de l'interaction V entre l'atome et le laser est surtout sensible aux points de croisement P et Q . Un atome entrant dans la "voie" $|a, n+1\rangle$ (grande flèche) a une certaine probabilité après traversée de P de passer sur la voie $|b, n\rangle$ (petite flèche simple), puis de nouveau lors de la traversée de Q (petite flèche double).
 C'est ce phénomène que nous allons essayer maintenant d'étudier un peu plus quantitativement.

② Equations de Schrödinger.

- Couplage atome-laser V

$$\langle (b, n)(r) | V | (a, n+1)(r) \rangle = \frac{1}{2} \omega_1(r) = \frac{1}{2} d(r) E \quad (XII-1)$$

$d(r)$: dipole de A lorsque le perturbateur est à une distance r .

- Posons

$$|\psi(t)\rangle = \alpha(t) e^{-i \int_{-T}^t (E_a(\tau) + \omega_L) d\tau} |(a, n+1)(t)\rangle + \beta(t) e^{-i \int_{-T}^t E_b(\tau) d\tau} |(b, n)(t)\rangle \quad (XII-2)$$

Comme les 2 états de la figure 4 diffèrent par 1 photon, ils évoluent, quand t (c-à-d r) varie, dans 2 sous-espaces \perp . Comme ils sont de plus normés, on a (moyennant un choix convenable de phases) :

$$\langle (a, n+1)(t) | \left(\frac{d}{dt} | (b, n)(t) \rangle \right) \rangle = \langle (a, n+1)(t) | \left(\frac{d}{dt} | (a, n+1)(t) \rangle \right) \rangle = \dots = 0 \quad (XII-3)$$

On montre alors aisément que l'équation de Schrödinger

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\psi(t)\rangle = [H_0(t) + V] |\psi(t)\rangle \quad (XII-4)$$

s'écrit :

$$\begin{cases} \dot{\beta}(t) = -i \frac{\omega_1(t)}{2} \alpha(t) e^{+i \int_{-T}^t \Delta E(t') dt'} \\ \dot{\alpha}(t) = -i \frac{\omega_1^*(t)}{2} \beta(t) e^{-i \int_{-T}^t \Delta E(t') dt'} \end{cases} \quad (XII-5)$$

où $\Delta E(t) = E_b(t) - E_a(t) - \omega_L \quad (XII-6)$

est la distance entre les 2 courbes de la fig. 5.

- $\omega_1 T$ étant très petit devant 1, on peut essayer de résoudre (XII-5) perturbativement.

③ Solution d'ordre 0 : α_0, β_0

- Si l'on remplace ω_1 par 0 dans (XII-5), on a

$$\alpha_0(t) = \alpha(-T) \quad \beta_0(t) = \beta(-T) \quad (XII-7)$$

- Comme l'atome et le laser ont le temps de se coupler entre 2 collisions le système entre à $-T$, non dans l'état $|a, n+1\rangle$, mais dans l'état $|2, n\rangle = \cos \varphi |a, n+1\rangle - \sin \varphi |b, n\rangle$ où $\tan 2\varphi = \omega_1 / \delta \ll 1$. Donc

$$\alpha_0(t) = \alpha(-T) = \cos \varphi \quad \beta_0(t) = \beta(-T) = -\sin \varphi \quad (XII-8)$$

La seule cause d'évolution provient alors des exponentielles de (XII-2). Le calcul de l'amplitude de se retrouver dans l'état $|1, n\rangle$ après la collision est identique à celui de la pag. (XII-7) et on retrouve le résultat de la théorie d'impact (à ceci près qu'il faut tenir compte maintenant de δT_c dans le déphasage Φ)

④ Solution d'ordre 1 : α_1, β_1

On remplace au 2^{ème} membre des équations (XII-5) $\alpha(t)$ et $\beta(t)$ par leurs expressions d'ordre 0, c-à-d par $\cos \varphi$ et $-\sin \varphi$. En fait, comme $\omega_1 \ll \delta$, on peut négliger le terme en $\sin \varphi$ et remplacer $\cos \varphi$ par 1, ce qui donne :

$$\dot{\beta}_1(t) = -i \frac{\omega_1(t)}{2} e^{-i \int_{-T}^t \Delta E(t') dt'} \quad (XII-9)$$

d'où l'on déduit pour β_1 .

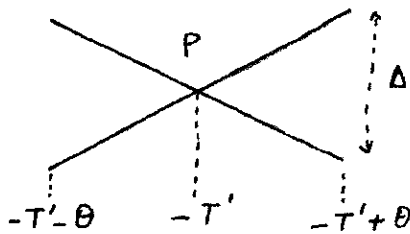
$$\beta_1(t) = -i \int_{-T}^t \frac{\omega_1(t')}{2} e^{-i \int_{-T}^{t'} \Delta E(t'') dt''} dt' \quad \text{(XII-10)} \quad \boxed{\text{XII-9}}$$

Il faut calculer $\beta_1(T)$ puis $|\beta_1(T)|^2$ pour obtenir la probabilité pour que l'atome absorbe un photon au cours de la collision.

En toute rigueur, il y a des termes d'interférence entre les solutions d'ordre 0 et 1, mais on peut les négliger hors de la limite d'impact car ils sont plus petits que la contribution de β_1 par un facteur de l'ordre de $\frac{1}{\delta \tau c}$.

⑤ Calcul approché de la solution d'ordre 1. Formule de Landau

- Dans (XII-10), $\omega_1(t')$ est une fonction lentement variable de t' . Par contre, l'exponentielle peut être une fonction très rapidement oscillante de t' . La contribution essentielle à l'intégrale de (XII-10) proviendra donc des valeurs de t' pour lesquelles la phase de l'exponentielle est stationnaire, c.-à-d. du voisinage du point où $\Delta E(t') = 0$, c.-à-d. encore du voisinage des points de croisement P et Q de la figure 5.
- Considérons alors un intervalle 2θ autour de $-T'$ (fig. 6), suffisamment petit pour que l'on puisse remplacer dans cet intervalle les courbes de la figure 5 par leurs tangentes.



$\dot{\Delta E}$ est la dérivée en $t = -T'$ de $\Delta E(t)$

$$\dot{\Delta E} = \left. \frac{d}{dt} \Delta E(t) \right|_{t=-T'} \quad \text{(XII-11)}$$

c'est à dire encore la pente relative des 2 niveaux au point de croisement P.

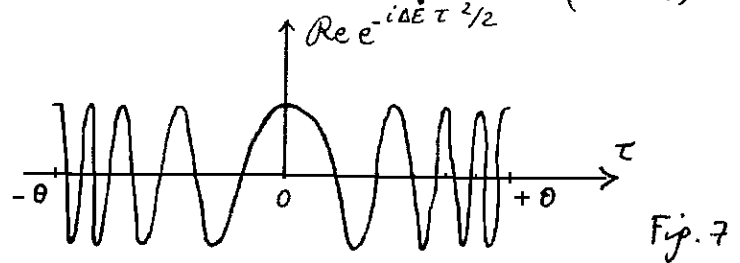
- Réécrivons l'exponentielle de (XII-9) sous la forme :

$$e^{-i \int_{-T}^{-T'} \Delta E(t') dt'} e^{-i \int_{-T'}^t \Delta E(t') dt'} \quad \text{(XII-12)}$$

En repérant t par rapport à $-T'$ grâce au changement de variable $t = -T' + \tau$, on obtient pour la 2^{ème} exponentielle si $|\tau| < \theta$:

$$e^{-i \int_0^\tau \dot{\Delta E} \tau' d\tau'} = e^{-i \dot{\Delta E} \tau^2 / 2} \quad \text{(XII-13)}$$

dont la variation avec τ lorsque τ explore l'intervalle $-\theta, +\theta$ autour de 0 a l'allure représentée sur la fig. 7, celle d'une exponentielle oscillant de plus en plus vite quand on s'éloigne de 0.



- Supposons d'abord

$$\dot{\Delta E} \theta^2 \gg 1 \quad \text{(XII-14)}$$

Au bord de l'intervalle de la fig. 7, l'exponentielle oscille très rapidement. Donc la vitesse de variation de β_1 , donnée par XII-9, oscille trop rapidement pour que β_1 puisse se bâtir.

On pourra donc considérer, avec une approximation satisfaisante, que l'essentiel de la variation de β_1 se fait à l'intérieur de l'intervalle de la figure 7, près de 0, et que à l'extérieur de cet intervalle (excepté bien sûr au voisinage des 2^{èmes} croisements Q de la fig. 5), β_1 ne varie pas. (XII-14) permet de considérer que l'essentiel de la variation de β_1 se fait dans une région autour de P où les énergies des niveaux varient linéairement avec t .

Il est difficile de donner, dans le cas général, un ordre de grandeur de ΔE et θ . Assimilons, très grossièrement, θ à τ_c , ΔE à δ/τ_c . La condition (XII-14) devient alors $\delta\tau_c \gg 1$, ce que nous supposons précisément dans ce § E.

- Supposons également
$$\Delta E \theta \gg \omega_1 \tag{XII-15}$$

Aux 2 extrémités de l'intervalle de la fig. 6, l'effet du couplage avec le laser est beaucoup plus faible que l'écart entre les 2 niveaux. On peut donc valablement considérer que, en ces points, les états propres de H_0 et ceux de $H_0 + V$ coïncident (confondre $|1, n\rangle$, $|2, n\rangle$ avec $|b, n\rangle$, $|a, n+1\rangle$).

Comme plus haut, assimilons θ à τ_c , ΔE à δ/τ_c . On obtient alors pour (XII-15) $\delta \gg \omega_1$, ce qui est très bien vérifié puisque $\delta\tau_c \gg 1$ et que $\omega_1\tau_c \ll 1$.

- Finalement, on peut, lorsque (XII-14) et (XII-15) sont vérifiées obtenir une approximation satisfaisante de la solution d'ordre 1, (XII-10)

Si l'on néglige la variation de $\omega_1(t')$ avec t' dans l'intervalle de la figure 6, et si l'on pose $\tilde{\omega}_1 = \omega_1(-T')$, on obtient pour l'amplitude de transition $|a, n+1\rangle \rightarrow |b, n\rangle$ après traversée du croisement P :

$$\beta_1(-T'+\theta) - \underbrace{\beta_1(-T'-\theta)}_{=0} = \beta_1(-T'+\theta) = -i \frac{\tilde{\omega}_1}{2} e^{-i \int_{-T}^{-T'} \Delta E(t') dt'} \int_{-\theta}^{+\theta} dt e^{-i \Delta E \tau^2 / 2} \tag{XII-16}$$

On a utilisé (XII-12), (XII-13) et considéré, conformément à la discussion précédente que l'essentiel de la variation de β_1 se fait dans l'intervalle de la figure 6.

Posons
$$\Delta E \tau^2 / 2 = u^2 \tag{XII-17}$$

La dernière intégrale de (XII-16) s'écrit alors

$$\sqrt{\frac{2}{\Delta E}} \int_{-\sqrt{\frac{\Delta E \theta^2}{2}}}^{+\sqrt{\frac{\Delta E \theta^2}{2}}} e^{-iu^2} du \tag{XII-18}$$

Compte tenu de (XII-14), on peut dans (XII-18) étendre les bornes d'intégration à $-\infty$ et $+\infty$. En introduisant de plus un facteur de convergence, on obtient :

$$\sqrt{\frac{2}{\Delta E}} \lim_{\epsilon \rightarrow 0^+} \int_{-\infty}^{+\infty} e^{-i(1+\epsilon)u^2} du = \sqrt{\frac{2\pi}{\Delta E}} e^{-i\pi/4} \tag{XII-19}$$

Reportant (XII-19) dans (XII-16), on obtient finalement pour l'amplitude de transition $|a, n+1\rangle \rightarrow |b, n\rangle$ au point P (petite flèche de la fig. 5) :

$$-i e^{-i\pi/4} e^{-i \int_{-T}^{-T'} \Delta E(t') dt'} \sqrt{\frac{\pi \tilde{\omega}_1^2}{2 \Delta E}} \tag{XII-20}$$

- Après la traversée de P, β_1 n'évolue plus jusqu'au 2^{ème} point de croisement Q de la figure 5, où il subit une 2^{ème} variation que l'on calcule par la même méthode en considérant un intervalle de largeur 2θ autour de $+T'$, ce qui donne la contribution suivante associée à la petite flèche double de la figure 5 :

$$-i e^{i\pi/4} e^{-i \int_{-T}^{+T'} \Delta E(t') dt'} \sqrt{\frac{\pi \tilde{\omega}_1^2}{2 \Delta E}} \tag{XII-21}$$

- L'amplitude totale de transition est la somme de (XII-20) et (XII-21) qu'il faut élever en module au carré.

La phase relative de ces 2 contributions fait intervenir $e^{-i \int_{-T}^{+T} \Delta E(t) dt}$, c-à-d le déphasage total accumulé entre P et ρ .

D'une collision à l'autre, ce déphasage varie beaucoup, puisqu'on suppose précisément ici $\delta \tau_c \gg 1$. Lors de la moyenne sur les collisions, le terme d'interférence entre (XII-20) et (XII-21) s'annulera donc et il suffit pour avoir la probabilité de transition $|a, n+1\rangle \rightarrow |b, n\rangle$ d'ajouter les carrés des modules de (XII-20) et (XII-21), ce qui donne:

$$P(|a, n+1\rangle \rightarrow |b, n\rangle) = \frac{\pi \tilde{\omega}_1^2}{\Delta E} \quad (XII-22)$$

On obtient ainsi la formule de Landau.

- En plus des conditions de validité (XII-14) et (XII-15), il faut ajouter maintenant

$$\frac{\pi \tilde{\omega}_1^2}{\Delta E} \ll 1 \quad (XII-23)$$

qui exprime que le calcul de perturbation en ω_1 est valable (probabilité de transition faible)

- Si l'on assimile comme plus haut ΔE à δ/τ_c , on voit que $\pi \tilde{\omega}_1^2 / \Delta E \sim \tilde{\omega}_1^2 \tau_c / \delta \ll \omega_1^2 \tau_c^2$ car $\delta \tau_c \ll 1$. Comme on suppose ici $\omega_1 \tau_c \ll 1$, la condition de validité (XII-23) est bien remplie.

On peut encore écrire

$$\frac{\pi \tilde{\omega}_1^2}{\Delta E} \sim \frac{\tilde{\omega}_1^2 \tau_c}{\delta} = \frac{\tilde{\omega}_1^2}{\delta^2} \delta \tau_c \gg \frac{\tilde{\omega}_1^2}{\delta^2} \quad (XII-24)$$

ce qui montre que le résultat trouvé est plus important que celui du régime d'impact ($\sim \tilde{\omega}_1^2 / \delta^2$) et permet donc, dans le calcul de la probabilité de transition, d'ignorer la solution d'ordre 0 des équations (XII-15)

Remarques.

(i) Il existe une autre situation où l'on peut donner une solution approchée intéressante des équations (XII-5). C'est celle où ω_1 est suffisamment intense pour qu'il soit nécessaire de calculer son effet à tous les ordres, l'essentiel de cet effet se produisant néanmoins dans l'intervalle de variation linéaire 2θ (autour du point de croisement des 2 niveaux non perturbés) satisfaisant aux conditions (XII-14) et (XII-15).

On obtient alors pour la probabilité de transition après traversée du 1^{er} croisement $1 - e^{-\pi \tilde{\omega}_1^2 / 2\Delta E}$, puis après le 2^{em} croisement (le terme d'interférence étant comme plus haut négligé):

$$P = 2 e^{-\pi \tilde{\omega}_1^2 / 2\Delta E} [1 - e^{-\pi \tilde{\omega}_1^2 / 2\Delta E}] \quad (XII-25)$$

C'est la formule de Landau-Zener qui se réduit à la formule de Landau pour ω_1 suffisamment petit

$$P \approx \frac{\pi \tilde{\omega}_1^2}{\Delta E} \quad \text{si} \quad \frac{\pi \tilde{\omega}_1^2}{\Delta E} \ll 1 \quad (XII-26)$$

et devient

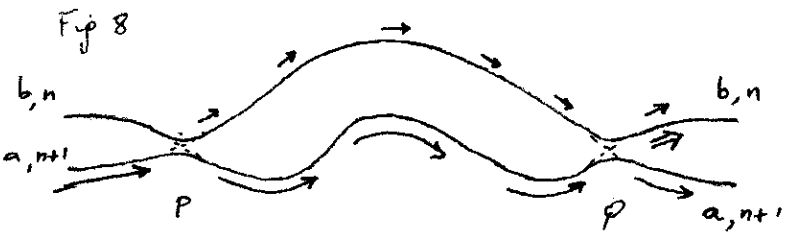
$$P = 2 e^{-\pi \tilde{\omega}_1^2 / 2\Delta E} \quad \text{si} \quad \frac{\pi \tilde{\omega}_1^2}{\Delta E} \gg 1 \quad (XII-27)$$

(ii) lorsqu'on tient compte du couplage V entre l'atome et le laser, les croisements des figures 4 et 5 deviennent des anticroisements

Quand ω , est très petit, on peut dire que l'on traverse très vite des anticroisements. A l'approximation soudaine, on reste sur le même niveau non perturbé $|a, n+1\rangle$ ou $|b, n\rangle$. La formule de Landau XII-22 ou XII-26 donne la 1^{ère} correction à l'approximation soudaine.

Quand ω , est grand, la traversée de l'anticroisement se fait plus lentement. Si elle était infiniment lente, on resterait sur le même niveau perturbé. C'est l'approximation adiabatique. La formule de Landau-Zener, qui repose sur les conditions de validité (XII-14) et (XII-15), permet de comprendre comment on passe continuellement de l'approximation soudaine à l'approximation adiabatique. En particulier, l'expression (XII-27) représente la 1^{ère} correction à l'approximation adiabatique.

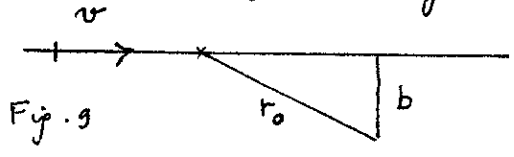
(iii) Il peut paraître surprenant que dans les 2 limites $\frac{\pi \tilde{\omega}_1^2}{\Delta E} \gg 1$ et $\frac{\pi \tilde{\omega}_1^2}{\Delta E} \ll 1$, la probabilité de transition soit très faible. A la limite soudaine, on voit clairement sur la fig. 5 que c'est parce que la probabilité de changer de niveau non perturbé est faible.



A la limite adiabatique (fig. 8) la probabilité de changer de niveau non perturbé est au contraire très grande à chaque anticroisement. Après la traversée de P, la situation est donc très différente par rapport à celle de la fig. 8. Par contre après traversée de Q, on retrouve bien comme sur la fig. 5 que la probabilité de passer sur b, n est une somme de 2 contributions très petites.

⑥ Moyenne sur les collisions

- Collision de vitesse v et de paramètre d'impact b .
 On suppose que l'énergie cinétique incidente E , de l'ordre de kT , est très grande devant S (voir figure 4)* et que le croisement I n'est pas trop profond, de sorte que la vitesse de la particule en $r=r_0$ est toujours pratiquement égale à la vitesse incidente v .



On peut alors aisément calculer la vitesse radiale v_r de la particule au point $r=r_0$ (cf fig. 9). On trouve aisément

$$v_r = v \frac{\sqrt{r_0^2 - b^2}}{r_0} \quad (XII-28)$$

- Relations ΔE , c-à-d la pente des niveaux qui se croisent sur la figure 5 à la même pente relative sur la figure 4

$$\Delta E = \frac{d}{dt} \Delta E \Big|_{r=r_0} = \frac{d}{dr} \Delta E \Big|_{r=r_0} \times \underbrace{\frac{dr}{dt}}_{v_r} \Big|_{r=r_0} = v \frac{\sqrt{r_0^2 - b^2}}{r_0} \left(\frac{d}{dr} \Delta E \right)_{r=r_0} \quad (XII-29)$$

- Moyenne sur v et b (même calcul que celui de la page XI-5)

$$2\pi N \int b db \int f(\vec{v}) d^3v \quad \text{et} \quad \frac{r_0}{\sqrt{r_0^2 - b^2}} \frac{\pi \tilde{\omega}_1^2}{\left(\frac{d}{dr} \Delta E \right)_{r=r_0}} \quad (XII-30)$$

* En toute rigueur, il faudrait ajouter aux 2 courbes de potentiel de la fig. 4 le potentiel centrifuge

On note que v se simplifie. L'intégrale sur v donne alors 1.

Quant à l'intégrale sur b , nous l'effectuons de 0 à r_0 , puisque pour $b > r_0$, le perturbateur ne s'approche plus suffisamment près pour que le système traverse au point de croisement. Ceci revient à négliger l'effet des collisions ayant un $b > r_0$. (Notons également que pour b très petit, l'approximation de la trajectoire rectiligne classique n'a plus beaucoup de sens). On obtient ainsi:

$$\int_0^{r_0} db \frac{r_0 b}{\sqrt{r_0^2 - b^2}} = r_0^2 \tag{XII-31}$$

de sorte que finalement :

$$P(|a, n+1\rangle \rightarrow |b, n\rangle) = N r_0^2 \frac{2\pi^2 \tilde{\omega}_1^2}{\left(\frac{d}{dr} \Delta E\right)_{r=r_0}} \tag{XII-32}$$

La probabilité moyenne de transition dépend donc finalement du nombre N de perturbateurs, de l'abscisse r_0 du point de croisement de la fréquence de Rabi du couplage atome-laser en ce point ω_1 , et de la pente relative des 2 niveaux qui se croisent.

⑤ Liens avec l'approximation quasistatique.

$$(\omega_1 \tau_c \ll 1, \omega_1 \ll \delta)$$

Lorsque $\delta \tau_c \ll 1$, la collision elle-même ne se traduit que par un déphasage sur le dipôle. Aucun échange d'énergie n'a le temps de se produire pendant le temps τ_c entre l'atome et le mode laser. C'est parce que cet atome et ce mode ont le temps de se recoupler entre 2 collisions que le déphasage introduit par la collision peut se manifester par des effets physiques, comme l'augmentation de la fluorescence à ω_0 . En termes classiques, on peut dire que, par suite du déphasage brusque qu'il subit lors de la collision, le dipôle atomique quitte brusquement son régime d'oscillation forcée dans l'onde laser. Il le réatteint ensuite entre 2 collisions avec un régime transitoire au cours duquel apparaît la fréquence ω_0 . Les phénomènes se comprennent bien en termes de collisions bien séparées dans le temps (régime d'impact).

Lorsque $\delta \tau_c \gg 1, \omega_1 \tau_c \ll 1$, la discussion des §§ précédents montre que l'atome absorbe effectivement un photon au cours de la collision, et seulement lorsque le perturbateur est à une distance r_0 bien définie de lui. Le phénomène important se passe donc en un temps très court et le mouvement des atomes ne semble plus jouer de rôle important. (La vitesse v n'apparaît pas dans l'expression XII-32). Il semble donc que l'on puisse, dans cette limite, appliquer l'approximation quasistatique qui consiste à considérer des atomes immobiles, les perturbateurs étant répartis autour de l'atome avec une densité spatiale proportionnelle au facteur de Boltzmann $e^{-V(r)/kT}$, $V(r)$ étant l'interaction. C'est ce que nous allons vérifier ci-dessous par un calcul simple, sans prétention de rigueur.

Soit N_A le nombre total d'atomes A , N le nombre de perturbateurs P par unité de volume. Le nombre de paires AP avec une position relative \vec{r} à d^3r près est $N_A N f(\vec{r}) d^3r$. On a bien sur $\int d^3r f(\vec{r}) = V$ où V est le volume de l'enceinte. $f(\vec{r})$ est donc pratiquement égal à 1, sauf pour des valeurs de r suffisamment petites pour que l'interaction $V(r)$ ne soit plus négligeable devant kT .

Le gaz tout entier peut être considéré comme un seul système quantique ayant un spectre d'absorption continue par suite de la répartition continue

