



**L'interaction résonnante d'un atome avec une onde laser
monochromatique et intense. Etude théorique par la méthode
de l'atome habillé. Etude expérimentale de quelques effets
nouveaux suggérés par cette méthode**

Serge Reynaud

► **To cite this version:**

Serge Reynaud. L'interaction résonnante d'un atome avec une onde laser monochromatique et intense. Etude théorique par la méthode de l'atome habillé. Etude expérimentale de quelques effets nouveaux suggérés par cette méthode. Physique Atomique [physics.atom-ph]. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 1981. Français. <NNT : >. <tel-00011837>

HAL Id: tel-00011837

<https://theses.hal.science/tel-00011837v1>

Submitted on 8 Mar 2006

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

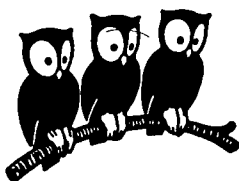
L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



HAL Authorization

UNIVERSITÉ DE PARIS

LABORATOIRE DE PHYSIQUE
DE L'ÉCOLE NORMALE
SUPÉRIEURE



THESE DE DOCTORAT D'ETAT
es Sciences Physiques

présentée

à l'Université Pierre et Marie CURIE (Paris VI)

par M. REYNAUD Serge

pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences

Sujet de la thèse : "L'INTERACTION RESONNANTE D'UN ATOME AVEC UNE ONDE LASER MONOCHROMATIQUE ET INTENSE. ETUDE THEORIQUE PAR LA METHODE DE L'ATOME HABILLE
ETUDE EXPERIMENTALE DE QUELQUES EFFETS NOUVEAUX SUGGERES PAR CETTE
METHODE" .

Soutenue le 26 Mar 1981

devant le Jury composé de :

MM.

J. BROSSEL
C. COHEN-TANNOUDJI
M. DUMONT
S. FENEUILLE
S. HAROCHE
C. MANUS

Président

Examineurs

THESE DE DOCTORAT D'ETAT

es Sciences Physiques

présentée

à l'Université Pierre et Marie CURIE (PARIS VI)

par M. REYNAUD Serge

pour obtenir le grade de Docteur ès Sciences

Sujet de la thèse : " L'INTERACTION RESONNANTE D'UN ATOME AVEC UNE ONDE LASER MONOCHROMATIQUE ET INTENSE. ETUDE THEORIQUE PAR LA METHODE DE L'ATOME HABILLE. ETUDE EXPERIMENTALE DE QUELQUES EFFETS NOUVEAUX SUGGERES PAR CETTE METHODE".

Soutenue le : 26 Mai 1981

devant le Jury composé de :

MM.	J.	BROSSEL	Président
	C.	COHEN-TANNOUDJI	} Examineurs
	M.	DUMONT	
	S.	FENEUILLE	
	S.	HAROCHE	
	C.	MANUS	

Le présent travail a été effectué au Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure pendant les années 1977 à 1981. Je remercie les Professeurs A. KASTLER et J. BROSSEL de m'y avoir accueilli.

J'ai eu la grande chance de travailler pendant toutes ces années sous la direction de Claude COHEN-TANNOUDJI. Ce travail, auquel il a consacré beaucoup de temps et d'énergie, doit beaucoup à sa profonde compréhension de la physique et à son imagination. Je voudrais lui exprimer ici toute ma gratitude.

J'ai aussi bénéficié des conseils, toujours avisés, de Jacques DUPONT-ROC. Son aide amicale a souvent été décisive, en particulier pendant les moments les plus difficiles sur le plan expérimental. Je lui en suis très reconnaissant.

J'ai eu le plaisir de travailler avec Marc HIMBERT, Jean DALIBARD, Alain ASPECT et Gérard ROGER. Les résultats expérimentaux en particulier, de ce travail sont aussi les leurs. Je suis heureux de remercier avec eux tous ceux, chercheurs, ingénieurs et techniciens, qui ont contribué à la conception et à la réalisation des montages expérimentaux.

Je remercie Monsieur S. FENEUILLE qui a suivi avec attention la réalisation de ce travail depuis son début. Je remercie également MM. DUMONT, S. HAROCHE et C. MANUS de l'intérêt qu'ils ont manifesté pour cette thèse en acceptant de participer au jury.

Je voudrais enfin exprimer toute ma reconnaissance à Madame EMO, Madame AUDOIN, M. GIAFFERI et M. MANCEAU qui, avec une grande gentillesse et une grande efficacité, se sont chargés de la réalisation de ce mémoire.

TABLE DES MATIERES

PREMIERE PARTIE : LA FLUORESCENCE D'UN ATOME EXCITE PAR LASER : ETUDE PAR LA METHODE DE L'ATOME HABILLE.....	14
1.1 - Le point de vue de l'atome habillé.....	15
1.2 - La relaxation radiative de l'atome habillé.....	28
1.3 - Etude de divers signaux de fluorescence.....	40
1.4 - L'effet des collisions.....	78
1.5 - Conditions de validité de l'équation pilote de l'atome habillé et conditions de validité des équations de Bloch optiques.....	98
1.6 - Extensions de la méthode à l'étude d'autres problèmes.....	108
Annexe 1 - Effet Raman spontané dans un champ laser intense.....	111
SECONDE PARTIE : LES SPECTRES DE FLUORESCENCE OU D'ABSORPTION D'UNE VAPEUR EXCITEE PAR LASER.....	122
11.1 - Introduction.....	123
11.2 - Utilisation des diagrammes de fréquences pour une discussion graphique de la sommation sur les vitesses.....	132
11.3 - L'effet Autler-Townes optique en vapeur.....	140
11.4 - Compensation de l'effet Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse.....	161
11.5 - Autres applications de la méthode graphique.....	176
TROISIEME PARTIE : COMPENSATION DE L'EFFET DOPPLER PAR DES DEPLACEMENTS LUMINEUX DEPENDANT DE LA VITESSE : ETUDE EXPERIMENTALE.....	178
111.1 - Introduction.....	179
111.2 - Le montage expérimental.....	183
111.3 - Présentation des résultats expérimentaux.....	196
111.4 - Conclusion.....	222
Annexe 2 - Nouvelles résonances apparaissant dans la spectroscopie d'absorption saturée des systèmes à trois niveaux.....	227
Annexe 3 - Corrélations temporelles entre photons émis dans les deux bandes latérales du triplet de fluorescence.....	233

QUATRIEME PARTIE : ETUDE ALGEBRIQUE DES SPECTRES DE FLUORESCENCE.....	238
IV,1 - Introduction.....	239
IV,2 - La méthode algébrique.....	241
IV,3 - Le lien entre la méthode algébrique et la méthode graphique.....	247
CONCLUSION.....	255
APPENDICES.....	257
A1 - Calcul de la distribution $q(m,T)$. Lien avec la cascade radiative de l'atome habillé.....	258
A2 - Appendice relatif à la méthode graphique.....	270
A3 - Optimisation de la focalisation des faisceaux pompe et sonde.....	277
A4 - Appendice relatif à la méthode algébrique.....	285
REFERENCES.....	295

I N T R O D U C T I O N

L'interaction résonnante d'un atome avec une onde électromagnétique est l'un des problèmes fondamentaux de la physique atomique. Les lois de l'émission et de l'absorption résonnantes de photons par un atome furent formulées par Einstein en 1917 [Aa 1] . Le premier traitement quantique de la diffusion résonnante de photons par un atome fut donné dès 1930 par Weisskopf et Wigner [Aa 2] . Ce problème a connu un renouveau d'intérêt considérable ces dernières années grâce au développement des sources laser. Les caractéristiques originales de ces nouvelles sources lumineuses - finesse spectrale, puissance , possibilité d'explorer de larges domaines de fréquence (lasers accordables)- ont en effet rendu possible l'étude expérimentale de l'interaction résonnante d'un atome avec une onde électromagnétique monochromatique et intense.

Un phénomène nouveau apparaît alors : l'oscillation de l'atome entre les deux niveaux de la transition excitée (oscillation ou précession de Rabi). La fréquence ω_1 de cette oscillation (fréquence de Rabi) est égale au produit du moment dipolaire d de la transition par le champ électrique $\mathcal{E}$ de l'onde laser ($\hbar = 1$)

$$\omega_1 = |d \mathcal{E}| \quad (1)$$

On peut aujourd'hui réaliser aisément des fréquences de Rabi ω_1 plus grandes que la largeur naturelle Γ de la transition excitée

$$\omega_1 \gg \Gamma \quad (2)$$

Cette condition (2) dont nous considérons qu'elle définit un champ intense peut se traduire de plusieurs façons équivalentes. Elle signifie que l'atome effectue plusieurs oscillations pendant la durée de vie radiative Γ^{-1} . Elle exprime que le couplage de l'atome avec l'onde laser (caractérisé par ω_1) est plus grand que le couplage avec les modes vides du champ électromagnétique (responsable de l'émission spontanée et caractérisé par la largeur naturelle Γ). En d'autres termes, lorsque la condition (2) est réalisée, l'absorption et l'émission induite de photons laser l'emportent sur l'émission spontanée.

MANIFESTATIONS EXPERIMENTALES DE L'OSCILLATION DE RABI

L'oscillation de Rabi peut être mise en évidence expérimentalement par l'observation de nombreux signaux. De nombreuses expériences ont porté sur la modification des spectres d'émission ou d'absorption qu'entraîne cette oscillation, c'est-à-dire sur l'aspect spectral du phénomène.

Certaines de ces expériences ont été réalisées sur un jet atomique irradié à angle droit par le faisceau laser, l'observation étant effectuée dans une direction elle aussi perpendiculaire au jet. Dans ces conditions, l'élargissement Doppler du au mouvement des atomes est supprimé ; tout se passe comme si l'on étudiait des atomes immobiles.

Plusieurs groupes [Ac] ont par exemple analysé la répartition spectrale de la lumière de fluorescence réémise sur la transition saturée par le laser (Fig 1).

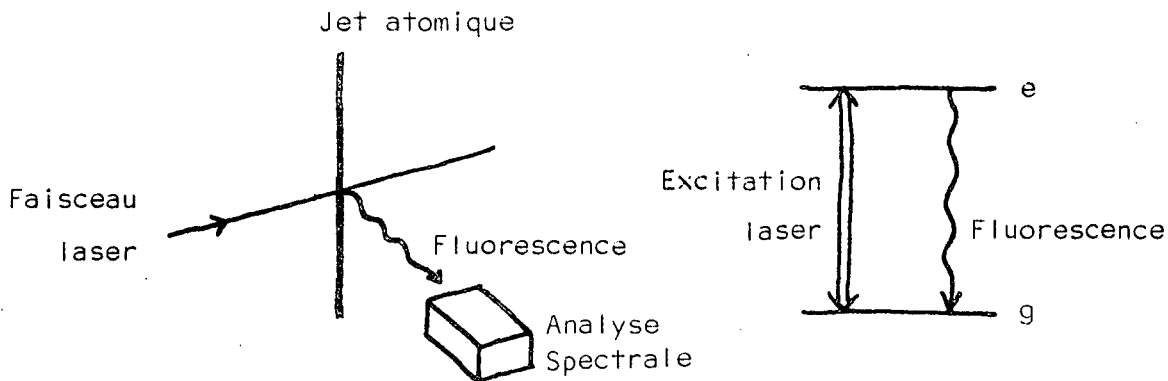


Fig 1 : Un jet atomique est irradié à angle droit par un faisceau laser résonnant avec la transition atomique ge . On étudie à angle droit la répartition spectrale de la lumière de fluorescence réémise sur ge .

Ils ont ainsi mis en évidence la structure entriplet de ce spectre de fluorescence (Fig 2).

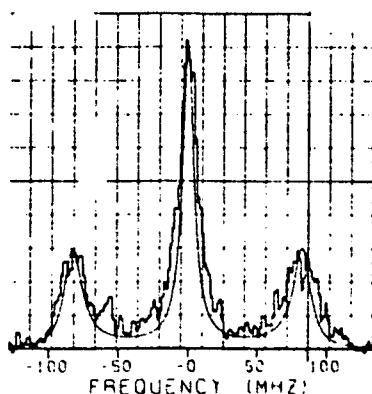


Fig 2 : Observation du triplet de fluorescence. La figure est extraite de l'article de R.E. GROVE, F.Y. WU et S. EZEKIEL (Phys. Rev. A 15 (1977)). Le trait fin correspond à un calcul théorique.

La composante centrale est centrée à la fréquence ω_L du laser. L'écart entre les raies est égal, pour une excitation exactement résonnante, à la fréquence de Rabi ω_1 . Les largeurs des raies sont de l'ordre de Γ . On peut donc interpréter la condition $\omega_1 \gg \Gamma$ d'une nouvelle manière : elle signifie que les trois raies ne se recouvrent pas et que le spectre est effectivement un triplet.

L'oscillation de Rabi se manifeste aussi sur les spectres d'émission ou d'absorption sur une transition partageant un niveau commun avec la transition saturée. Ces spectres ont une structure de doublet (effet Autler Townes optique ou effet Stark dynamique [Be 2]). L'écart des raies du doublet Autler Townes est égal, à résonance, à la fréquence de Rabi ω_1 .

D'autres expériences ont été réalisées en vapeur. La situation est alors moins pure parce que les signaux correspondent à une sommation sur des atomes de vitesses différentes (effet Doppler). La manifestation la plus courante de l'oscillation de Rabi est dans ces conditions l'"élargissement radiatif" des résonances de saturation [Bd] : les résonances d'absorption saturée, par exemple, ont une largeur de l'ordre de Γ pour les champs faibles ($\omega_1 \ll \Gamma$), mais qui augmente comme ω_1 pour les champs intenses ($\omega_1 \gg \Gamma$). Notons également que le doublet Autler Townes reste observable en vapeur dans certaines dispositions expérimentales particulières [Be3] .

L'oscillation de Rabi peut aussi être mise en évidence par l'observation de la modulation temporelle d'un signal à la fréquence ω_1 . Ce signal modulé peut être un signal transitoire se produisant après une modification brusque de l'un des paramètres : c'est le cas des signaux de transitoires cohérentes

("optical nutation") observés après que la fréquence atomique ait été brusquement amenée à résonance avec la fréquence laser par effet Stark ("Stark switching") [D&].

Récemment, on a pu mettre en évidence l'oscillation de Rabi par l'étude des corrélations temporelles entre photons de fluorescence émis par un jet atomique excité par laser [Ad 4-5-7]. Immédiatement après l'émission d'un photon, l'atome émetteur est certainement dans l'état inférieur et il ne peut émettre immédiatement après un second photon. Si l'on observe plusieurs atomes, on peut détecter, tout de suite après le premier photon, un second photon émis par un autre atome. Mais si la densité du jet atomique et le volume d'observation sont assez petits pour que l'on observe un seul atome, il faut attendre pour détecter un second photon que l'atome ait été réexcité par l'onde laser : la probabilité $P(\tau)$ de détecter deux photons séparés par un intervalle τ reproduit donc la variation avec τ de la population du niveau supérieur lorsque l'atome est initialement dans le niveau inférieur et met ainsi en évidence l'oscillation de Rabi (Fig 3).

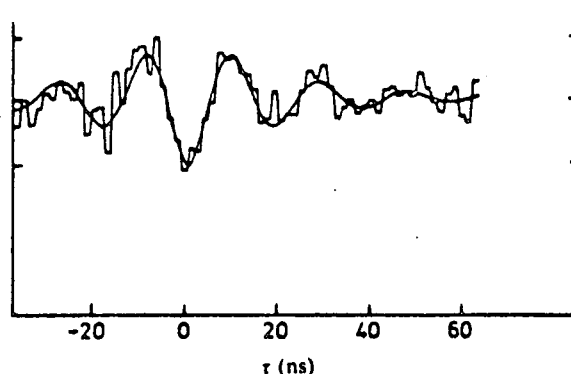


Fig 3 : Observation de l'oscillation de Rabi par l'étude des corrélations temporelles entre photons de fluorescence émis par un seul atome. Cette figure reproduit un résultat expérimental obtenu par le groupe du Pr. WALTHER et est extraite de l'article de revue de D.F. WALLS (Nature 280 451 (1979)).

Rappelons que cette expérience a un intérêt fondamental au delà du problème de l'interaction d'un atome avec une onde intense. Les photons émis par une source ordinaire manifestent en effet une tendance au groupement ("bunching") :

$P(\tau)$ est une fonction décroissante de τ ($P(\tau=0) > P(\tau \neq 0)$) ; effet Hanbury Brown et Twiss [Dk]). Ce groupement peut être compris en décrivant le champ électrique de l'onde lumineuse comme une fonction aléatoire classique. Par contre, les photons de fluorescence émis par un seul atome manifestent une tendance au dégroupement ("antibunching") : $P(\tau)$ est, au voisinage de $\tau = 0$ une fonction croissante de τ ($P(\tau=0) < P(\tau \neq 0)$) ; voir Fig 3). Il est impossible de rendre compte de ce dégroupement en assimilant le champ émis par l'atome à une fonction aléatoire classique. Le phénomène de dégroupement est donc une preuve expérimentale de la nature quantique du rayonnement électromagnétique.

Ayant décrit diverses manifestations expérimentales de l'oscillation de Rabi apparaissant lors de l'interaction d'un atome avec un champ résonnant monochromatique et intense, nous allons maintenant discuter quelques approches théoriques du problème. Ceci nous permettra ensuite de préciser les motivations du présent travail.

L'APPROCHE PERTURBATIVE

L'approche perturbative, utilisée par Weisskopf et Wigner [Aa 2], a ensuite été développée largement dans le cadre de l'électrodynamique quantique [Aa 3]. A l'ordre le plus bas, la fluorescence de résonance est décrite par le diagramme de la figure 4

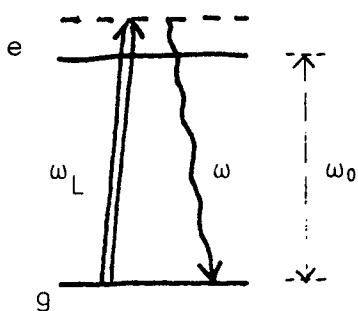


Figure 4 : Diagramme décrivant à l'ordre le plus bas la fluorescence de résonance (diffusion Rayleigh)

Un photon laser de fréquence ω_L est absorbé par l'atome qui passe de g à e puis retombe dans g en réémettant un photon de fluorescence de fréquence ω . L'amplitude

d'un tel processus est proportionnelle à

$$\frac{\omega_1}{\omega_L - \omega_0 + i \frac{\Gamma}{2}} \delta(\omega - \omega_L) \quad (3)$$

où ω_0 est la fréquence atomique (Fig 4) et Γ la largeur naturelle du niveau excité e. La fonction $\delta(\omega - \omega_L)$ impose au photon diffusé d'avoir la même fréquence que le photon laser et exprime la conservation de l'énergie (diffusion élastique ou diffusion Rayleigh). La section efficace de diffusion σ varie de façon résonnante lorsqu'on balaie ω_L dans un intervalle de largeur Γ autour de ω_0 :

$$\sigma \sim \omega_1^2 / ((\omega_L - \omega_0)^2 + \frac{\Gamma^2}{4}) \quad (4)$$

Il est intéressant de pousser l'approche perturbative à l'ordre suivant : l'atome peut alors absorber deux photons laser ω_L en émettant deux photons de fluorescence ω_A et ω_B (Fig 5).

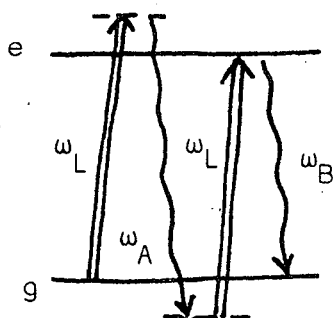


Fig 5 : Processus non linéaire d'ordre 2.

La conservation de l'énergie implique seulement

$$\omega_A + \omega_B = 2\omega_L \quad (4)$$

(et non $\omega_A = \omega_B = \omega_L$). Les processus non linéaires (d'ordre 2 ou d'ordre supérieur) permettent ainsi l'émission de photons de fluorescence à une fréquence différente de la fréquence laser (diffusion inélastique). Le processus de la figure 5 a une amplitude maximale lorsque

$$\omega_B = \omega_0 \quad (\text{à } \Gamma \text{ près}) \quad (5)$$

Dans ce cas, en effet, le niveau e est peuplé de manière résonnante après l'absorption du second photon laser. D'après (4) et (5)

$$\omega_A = 2\omega_L - \omega_0 \quad (\text{à } \Gamma \text{ près}) \quad (6)$$

Les diagrammes des figures 4 et 5 donnent donc une interprétation perturbative du triplet de fluorescence dans le cas d'une excitation non résonnante ($\omega_L \neq \omega_0$, voir Figure 6).

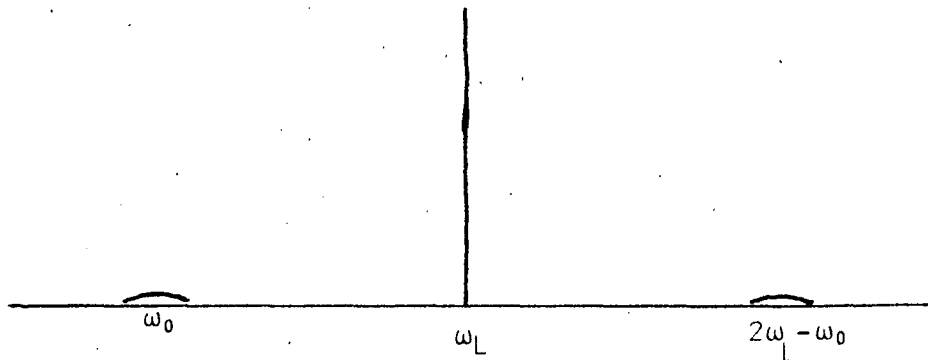


Fig 6 : Interprétation perturbative du triplet de fluorescence lorsque $\omega_L \neq \omega_0$. La raie centrale, de largeur nulle, apparaît au premier ordre (diffusion élastique). Les deux raies latérales, de largeur Γ , apparaissent au deuxième ordre (diffusion inélastique).

L'approche perturbative permet donc de montrer que des phénomènes nouveaux apparaissent lorsque les processus non linéaires sont pris en compte : diffusion inélastique et aussi, comme le suggère le diagramme de la figure 5, existence de corrélations temporelles entre les photons émis. Mais cette approche n'est valable que lorsque le paramètre de perturbation est petit devant 1

c'est-à-dire pour $\omega_1 \ll |\omega_L - \omega_0|$ ou $\omega_1 \ll \Gamma$ (voir expression 3). Lorsque la puissance devient suffisante pour saturer la transition ($\omega_1 > |\omega_L - \omega_0|$ et $\omega_1 > \Gamma$), il faut nécessairement traiter non perturbativement l'interaction atome-laser (autrement dit, l'absorption et l'émission stimulée de photons laser).

TRAITEMENTS NON PERTURBATIFS UTILISANT UNE DESCRIPTION CLASSIQUE DE L'ONDE LASER.

La plupart des méthodes qui ont été utilisées pour traiter non perturbativement le problème de la fluorescence de résonance en champ intense sont fondées sur une description classique du champ laser.

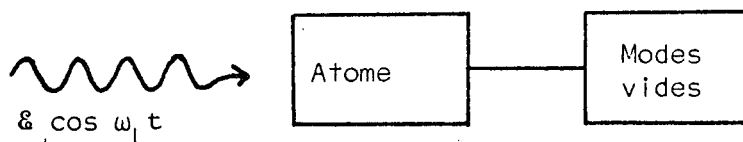


Fig 7 : Schéma de principe des méthodes utilisant une description classique de l'onde laser .

L'atome à deux niveaux est soumis à l'action d'un champ classique dépendant du temps $\& \cos \omega_L t$ et il est d'autre part couplé aux modes vides du champ électromagnétique (relaxation par émission spontanée). On peut alors décrire l'évolution de la matrice densité σ_A de l'atome par une équation pilote [De]

$$\frac{d}{dt} \sigma_A = -i [H_A - D \& \cos \omega_L t, \sigma_A] - \mathcal{T} \sigma_A \quad (7)$$

où H_0 est l'hamiltonien atomique, $(-D \& \cos \omega_L t)$ est l'hamiltonien d'interaction atome-laser et $\mathcal{T}$ une matrice décrivant la relaxation par émission spontanée. Le problème est donc analogue à celui de la résonance magnétique [Da] où un spin est soumis à un champ de radiofréquence d'une part et à des processus de relaxation d'autre part. D'ailleurs, si on associe un spin fictif au système à deux niveaux [Da], les équations d'évolution de ce spin déduites de (7)

ont la même forme que les équations de Bloch décrivant la résonance magnétique et elles sont pour cette raison appelées "équations de Bloch optiques".

On peut à partir de ces "équations de Bloch optiques" calculer tous les signaux de fluorescence ou d'absorption. Le spectre de fluorescence par exemple est relié à la fonction de corrélation $\langle D^+(t+\tau) D^-(t) \rangle$ faisant intervenir la valeur du dipole à deux instants différents. Or on peut calculer cette fonction de corrélation à partir des équations de Bloch optiques grâce au théorème de régression quantique (voir plus loin § 1-3.2).

La méthode des équations de Bloch optiques et, plus généralement, les méthodes traitant non perturbativement l'interaction entre l'atome et l'onde laser décrite classiquement ont de nombreux succès à leur actif ; on peut citer parmi eux le calcul du triplet de fluorescence par Mollow [Ab 6], du doublet Autler Townes optique par Feldman et Feld ou par Mollow [Ba 4], l'étude des spectres d'absorption saturée en champ intense par Haroche et Hartmann [Bb 1] ou la prévision théorique du phénomène de dégroupement par Cohen-Tannoudji d'une part [Ad 1], Carmichael et Walls d'autre part [Ad 2].

On peut toutefois faire plusieurs reproches à ces méthodes. Bien que les résultats obtenus à haute intensité ($\omega_L \gg \Gamma$) aient souvent une forme très simple, ils apparaissent en général après des calculs assez lourds. Ces calculs ne fournissent pas des images physiques permettant une interprétation simple de ces résultats. Enfin les calculs eux mêmes deviennent rapidement très compliqués pour les systèmes à plus de deux niveaux.

LA METHODE DE L'ATOME HABILLE

Le point de vue de l'atome habillé consiste à traiter quantiquement le champ laser incident et à étudier le système quantique formé par l'atome et ce champ laser en interaction mutuelle (Fig 8).

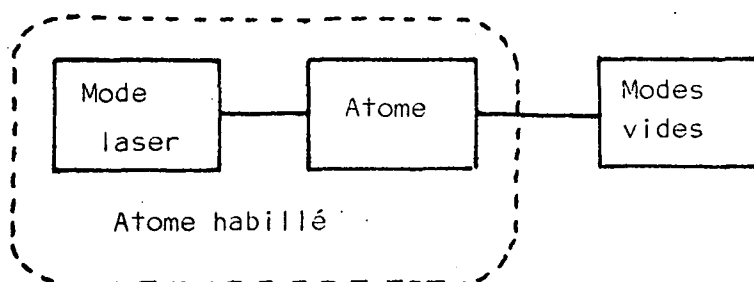


Fig 8 : Schéma de principe de la méthode de l'atome habillé (à comparer avec celui de la Fig. 7).

Le traitement non perturbatif de l'interaction atome laser est très simple dans ce point de vue : on obtient immédiatement les fréquences de Bohr du système composé en diagonalisant l'hamiltonien correspondant. Introduit d'abord dans le domaine des radiofréquences [Di 1], ce point de vue a permis de donner une interprétation synthétique des divers types de résonances observables dans ce domaine (résonances à un ou plusieurs quanta, "résonances de cohérences" observables en pompage optique transversal ,....), du doublement Autler Townes associé à la saturation de la transition. Il y a d'autre part suggéré un certain nombre d'effets nouveaux tels que la modification des propriétés magnétiques d'un niveau atomique interagissant avec un champ de radiofréquences non résonnant [Di 2] .

Comme on va le voir dès le début de la première partie, la méthode de l'atome habillé permet immédiatement de comprendre la structure en triplet du spectre de fluorescence : les trois raies correspondent aux trois fréquences possibles des transitions permises entre niveaux de l'atome habillé.

Pour pouvoir obtenir des résultats plus quantitatifs à partir de la méthode de l'atome habillé, il faut résoudre un certain nombre de problèmes nouveaux par rapport au domaine des radiofréquences et qui se posent dans le domaine optique.

L'émission spontanée avait un effet négligeable dans le domaine des radiofréquences ; c'est la principale cause de relaxation dans le domaine optique et, de plus, c'est l'émission spontanée qui fournit les signaux de fluorescence. On ne peut se contenter de décrire l'émission spontanée par la règle d'or de Fermi. Comme on le verra dans la première partie, on doit plutôt considérer que l'atome habillé effectue une cascade radiative le long de son diagramme d'énergie.

L'effet Doppler peut être ignoré si l'on se limite aux expériences sur jet atomique. Mais lorsqu'on étudie une vapeur atomique, la largeur Doppler est en général beaucoup plus grande (dans le domaine optique) que la largeur naturelle Γ et la fréquence de Rabi ω_1 .

Les collisions ont aussi un effet important dans les vapeurs atomiques en introduisant une nouvelle source de relaxation et en modifiant ainsi les signaux de fluorescence ou d'absorption.

LES MOTIVATIONS DU PRESENT TRAVAIL

La première motivation de ce travail est de montrer que la méthode de l'atome habillé est non seulement bien adaptée à des discussions qualitatives simples mais qu'elle permet aussi un traitement quantitatif complet de tous les problèmes évoqués ci-dessus : calcul des signaux de fluorescence ou d'absorption en champ intense, y compris dans les expériences en vapeur ou effet Doppler et collisions jouent un rôle important, étude de corrélations temporelles entre photons. Les résultats obtenus ont généralement (à la limite des champs intenses $\omega_1 \gg \gamma$) une forme simple et une interprétation physique claire : par exemple, le nombre de photons émis (par unité de temps) sur une transition de l'atome habillé pourra être exprimé comme le produit du taux d'émission spontanée (associé à la transition) par la population du niveau supérieur.

La méthode de l'atome habillé permet ainsi de comprendre de manière plus simple des effets ayant déjà fait l'objet de nombreux travaux : triplet de fluorescence, dégroupement des photons émis par un seul atome, effet Autler Townes optique sur jet ou en vapeur, absorption saturée, redistribution collisionnelle par exemple. Mais cette méthode est si bien adaptée aux champs intenses qu'elle a permis de prévoir des effets nouveaux. Une deuxième motivation de ce travail est de discuter ces effets nouveaux dont certains ont pu être mis en évidence expérimentalement au cours de ce travail de thèse :

- possibilité de faire apparaître des structures étroites dans les spectres de vapeur en l'absence de tout effet de population (compensation de l'effet Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse)
- nouvelles résonances dans la spectroscopie d'absorption saturée des systèmes à trois niveaux.
- existence de corrélations temporelles entre les photons émis dans les deux bandes latérales du triplet de fluorescence.

Enfin, il sera intéressant de comparer la méthode de l'atome habillé avec la méthode des équations de Bloch optiques. Nous montrerons qu'elles sont équivalentes dans un large domaine, la méthode de l'atome habillé étant toutefois, comme on l'a déjà dit, beaucoup mieux adaptée aux champs intenses.

Mais, nous verrons aussi qu'il existe des situations (étude des collisions hors du régime d'impact) où la relaxation est modifiée par la présence du laser. On doit alors forcément considérer que le système qui relaxe est l'atome habillé et non plus l'atome. Dans de telles situations, la méthode de l'atome habillé reste applicable alors qu'on ne peut écrire les équations de Bloch optiques. On précisera donc les conditions de validité respectives des deux méthodes.

PLAN DE LA THESE

Dans la première partie, on s'intéresse essentiellement au problème de la fluorescence de résonance d'un atome à deux niveaux ; l'effet Doppler est ignoré. On montre que la méthode de l'atome habillé permet une étude quantitative du problème sous tous ses aspects et que les résultats obtenus s'interprètent bien en considérant la fluorescence de résonance comme une cascade radiative de l'atome habillé le long de son diagramme d'énergie. On discute l'effet des collisions et on précise les conditions de validité de la méthode de l'atome habillé et de la méthode des équations de Bloch optiques.

Dans la deuxième partie, on montre que la méthode de l'atome habillé permet de comprendre simplement l'allure des spectres de fluorescence et d'absorption d'une vapeur par des discussions graphiques fondées sur l'utilisation de diagrammes de fréquence.

Dans ces deux premières parties, on s'efforce de mettre en évidence la portée très générale de la méthode de l'atome habillé. On y discute donc à la fois des effets déjà étudiés par d'autres méthodes et des effets nouveaux suggérés par notre méthode.

La troisième partie est consacrée à la mise en évidence expérimentale de certains de ces effets. On présente les résultats obtenus concernant la compensation de l'effet Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse et on discute quelques applications possibles de cette méthode. Les deux autres effets étudiés expérimentalement, nouvelles résonances d'absorption saturée et corrélations temporelles entre les bandes latérales du triplet, sont exposées en détail dans les thèses de troisième cycle de Marc Himbert et Jean Dalibard et on se contente ici de reproduire les publications correspondantes.

Enfin, dans la quatrième partie, on expose une méthode algébrique de calcul des spectres reliée à la méthode de l'atome habillé et très bien adaptée au calcul sur ordinateur des spectres.

PREMIERE PARTIE

LA FLUORESCENCE D'UN ATOME EXCITE PAR LASER : ETUDE PAR LA METHODE DE L'ATOME HABILLE

Dans cette première partie, nous ignorons l'effet Doppler. Les résultats seront directement applicables aux expériences sur jet. Nous reviendrons dans la deuxième partie sur l'application de la méthode de l'atome habillé aux expériences en phase vapeur.

Nous étudions la fluorescence d'un atome excité par un laser intense et quasi-résonnant correspondant aux conditions :

$$\omega_1 \gg \Gamma \quad (1-0.1)$$

$$\omega_1 \ll \omega_0 \quad (1-0.2)$$

$$|\omega_L - \omega_0| \ll \omega_0 \quad (1-0.3)$$

Les deux premières conditions définissent ce que l'on appelle un champ intense : le couplage de l'atome avec le champ laser est beaucoup plus grand que le couplage avec les modes vides (condition 1-0.1) mais les effets d'optique non linéaire tels que la génération d'harmoniques $3\omega_L, \dots$ restent négligeables (condition 1-0.2). La deuxième et la troisième conditions permettent de considérer qu'une seule transition atomique est couplée de manière efficace avec le laser.

Il faut noter aussi que nous supposerons la densité atomique suffisamment faible pour éviter tout effet collectif [Ai] .

C H A P I T R E 1-1

LE POINT DE VUE DE L'ATOME HABILÉ

Dans ce chapitre 1-1, nous définissons l'atome habillé, nous étudions son diagramme d'énergie et nous discutons qualitativement le lien entre la fluorescence et la cascade radiative de l'atome habillé.

1-1.1 L'atome habillé

L'atome interagit d'une part avec le champ laser et d'autre part avec les autres modes du champ électromagnétique qui sont vides de photons (Fig 1-1.1)

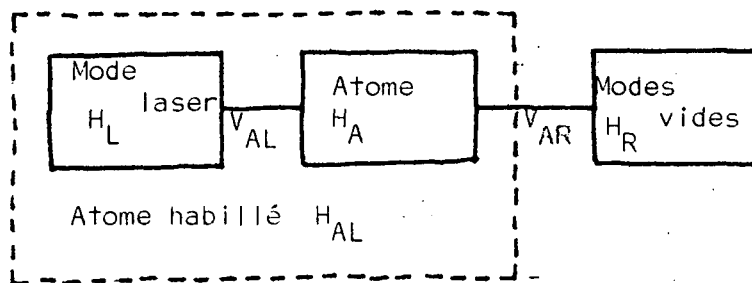


Figure 1-1.1

L'atome habillé est le système quantique formé par l'atome et les photons laser en interaction mutuelle. L'hamiltonien de ce système

$$H_{AL} = H_A + H_L + V_{AL} \quad (1-1.1)$$

contient donc l'effet de l'interaction atome-laser (V_{AL} sur la Fig 1-1.1).

L'interaction atome-modes vides (V_{AR} sur la Fig 1-1.1) est responsable du phénomène de fluorescence, autrement dit de la diffusion de photons du mode laser vers les modes vides.

Dans l'expérience réelle, le mode laser est constamment alimenté en photons par les atomes de la cavité laser. Ici, nous considérerons un

problème équivalent où le champ incident est "emprisonné" dans une cavité en anneau parfaite (Fig I-1.2)

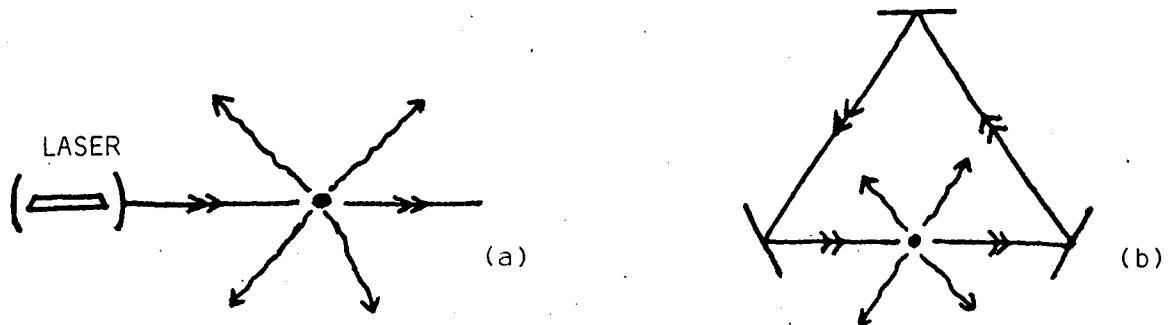


Figure I-1.2 (a) Problème réel : interaction de l'atome avec un champ laser incident

(b) "Modélisation" du problème : interaction de l'atome avec un champ monomode emprisonné dans une cavité en anneau parfaite .

Ceci nous permettra d'oublier complètement les couplages entre le mode laser et les atomes de la cavité laser et donc de considérer que la diffusion de photons du mode laser vers les modes vides est la seule cause d'évolution du mode laser.

Remarques

(i) Ce transfert vide petit à petit le mode laser. Nous verrons plus loin que ce phénomène est extrêmement lent et que l'on peut en fait négliger son effet sur l'état du mode laser. L'effet sur les modes vides est par contre essentiel puisque c'est précisément cet effet qui constitue le phénomène de fluorescence que nous étudions dans ce travail.

(ii) Dans l'expérience réelle (Fig I-1 2a) , le couplage du mode laser avec les atomes de la cavité qui assure l'alimentation du mode en photons, introduit également une source de bruit, les fluctuations du champ laser. L'effet de ces fluctuations sur les signaux de fluorescence $[Ag]$ est négligeable si la largeur du spectre de fluctuations est petite devant la largeur naturelle Γ de l'atome. Nous supposons qu'il en est ainsi et négligerons ces fluctuations.

1-1.2 Le diagramme d'énergie de l'atome habillé

Les états non couplés

Les états propres de l'hamiltonien non perturbé $H_A + H_L$ sont indicés par deux nombres quantiques : e ou g pour l'atome (e état excité, g état fondamental), n pour le nombre de photons dans le mode laser.

L'excitation laser étant quasi résonnante, les niveaux $|e, n\rangle$ (énergie $\omega_0 + n\omega_L$ avec $\hbar=1$) et $|g, n+1\rangle$ (énergie $(n+1)\omega_L$) sont quasi dégénérés et forment une multiplicité $\mathcal{E}_n$ de dimension 2 (Fig 1-1.3) : la différence d'énergie entre ces deux niveaux

$$\delta = \omega_L - \omega_0 \quad (1-1.2)$$

est beaucoup plus petite que la différence d'énergie ω_L entre deux multiplicités adjacentes $\mathcal{E}_n$ et $\mathcal{E}_{n-1}$ (voir condition 1-0.3)

Le couplage atome laser

Dans le cadre de l'approximation dipolaire électrique, l'hamiltonien d'interaction V_{AL} entre l'atome et le champ laser s'écrit :

$$V_{AL} = -D \cdot E \quad (1-1.3)$$

où D est l'opérateur dipole électrique de l'atome et E l'opérateur champ électrique laser (pour un système à deux niveaux, il n'y a aucun effet de polarisation et on peut oublier le caractère vectoriel de D et E).

$$D = d(|e\rangle\langle g| + |g\rangle\langle e|) \quad (1-1.4)$$

$$E = E_0 (a + a^\dagger) \quad (1-1.5)$$

où a et $a^\dagger$ sont les opérateurs d'annihilation et de création d'un photon dans le mode laser ; d est le dipole de l'atome ; E_0 est un champ caractéristique des fluctuations du vide dans le mode laser.

$$E_0^2 = \langle 0 | E^2 | 0 \rangle \quad (1-1.6)$$

L'hamiltonien d'interaction V_{AL} couple les deux états appartenant à une même multiplicité $\mathcal{E}_n$

$$\nu_n = \langle e, n | V_{AL} | g, n+1 \rangle = \langle g, n+1 | V_{AL} | e, n \rangle = -dE \sqrt{n+1} \quad (1-1.7)$$

Ces couplages décrivent l'absorption et l'émission stimulée de photons laser par l'atome (l'atome passe de g à e en absorbant un photon laser ou réciproquement)

L'approximation du champ tournant

V_{AL} couple aussi des états appartenant à des multiplicités différentes (par exemple $|e, n+1\rangle$ et $|g, n\rangle$ voir Fig. 1-1.3) Les couplages (de l'ordre de la fréquence de Rabi ω_1) sont beaucoup plus petits que la fréquence optique ω_L et on peut tout à fait légitimement négliger les couplages entre multiplicités différentes. Ceci revient à négliger dans l'expression (1-1.3) de V_{AL} les termes antirésonnants $|e\rangle\langle g| a^+$ et $|g\rangle\langle e| a$ (approximation du champ tournant).

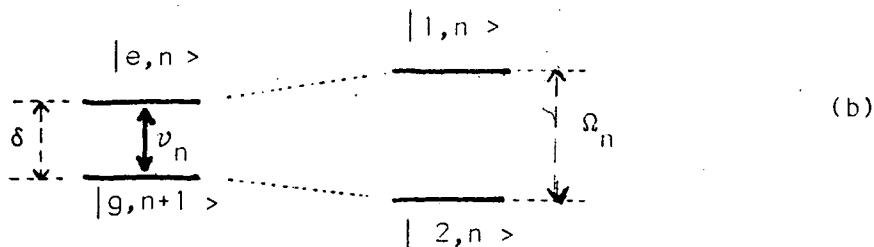
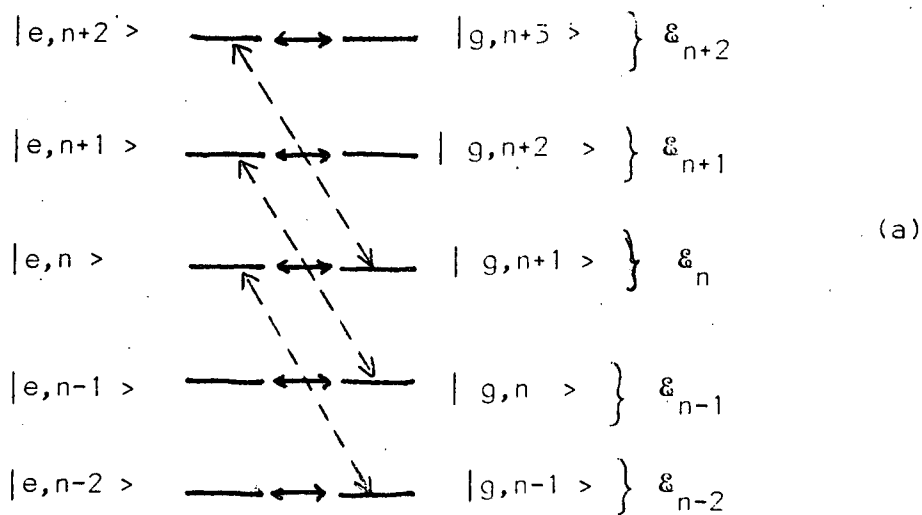


Figure 1-1.3 : (a) Plusieurs multiplicités de l'atome habillé. On a représenté les couplages entre états d'une multiplicité et, en pointillé, les couplages non résonnants que nous négligeons.

(b) Diagonalisation de l'interaction atome laser dans une multiplicité de l'atome habillé.

Les états propres de l'atome habillé

La recherche des états propres de l'atome habillé se ramène donc à la diagonalisation de l'hamiltonien dans chaque multiplicité. Les deux états propres de la multiplicité g_n ont pour expression

$$\begin{aligned} |1, n\rangle &= \cos \theta_n |e, n\rangle + \sin \theta_n |g, n+1\rangle \\ |2, n\rangle &= -\sin \theta_n |e, n\rangle + \cos \theta_n |g, n+1\rangle \end{aligned} \quad (1-1.8)$$

avec :

$$\operatorname{tg} 2\theta_n = -2 \nu_n / \delta \quad (1-1.9)$$

et ils sont séparés par une énergie Ω_n (Fig 1-1.3)

$$\Omega_n = (\delta^2 + 4\nu_n^2)^{1/2} \quad (1-1.10)$$

1-1.3) L'approximation quasi classique

Etat quasi classique du mode laser

L'état du mode laser oscillant au dessus du seuil est bien décrit par un état quasi classique : la distribution du nombre n de photons dans le mode laser a une dispersion Δn qui est très grande en valeur absolue mais très petite relativement à la valeur moyenne $\bar{n}$ du nombre de photons

$$1 \ll \Delta n \ll \bar{n} \quad (1-1.11)$$

On peut faire le lien entre le nombre moyen $\bar{n}$ de photons et le champ électrique classique $\mathcal{E}$ associé à l'onde laser en considérant que le mode laser est dans un état cohérent $|\alpha\rangle$ (les états cohérents introduits par Glauber [Db] correspondent à la meilleure description quantique d'un champ classique).

On obtient alors :

$$\bar{n} = |\alpha|^2 \quad (1-1.12)$$

$$\Delta n = |\alpha| = \sqrt{\bar{n}} \quad (1-1.13)$$

$$\bar{E} = 2E_0 |\alpha| \cos \omega_L t \quad (1-1.14)$$

On peut ainsi identifier $2E_0 |\alpha|$ avec le champ classique $\mathcal{E}$

$$\mathcal{E} = 2E_0 |\alpha| = 2E_0 \sqrt{\bar{n}} \quad (1-1.15)$$

Remarques

(i) Nous avons représenté le champ laser incident par un mode d'une cavité (voir § I.1.1). Le choix de cette cavité est largement arbitraire ; la seule contrainte est que le champ électrique "vu" par l'atome soit le même que dans l'expérience réelle. Autrement dit, E_0 et $\bar{n}$ dépendent des caractéristiques précises de la cavité mais ils sont toujours liés par (I-1.15).

(ii) Nous avons pris l'exemple d'un état cohérent mais ce qui suit est valable pour tout état quasi classique (i.e pour tout état vérifiant les conditions I-1.11)

Périodicité du diagramme d'énergie

Nous avons vu que le couplage v_n entre les deux états d'une même multiplicité était proportionnel à $\sqrt{n+1}$ (Eq. I-1.7). La variation de v_n dans la région du diagramme d'énergie qui nous intéresse (correspondant à une probabilité d'occupation non négligeable) est donnée par :

$$\Delta v_n / \bar{v}_n = \Delta \sqrt{n} / \sqrt{\bar{n}} = \frac{1}{2} \Delta n / \bar{n} \quad (I-1.16)$$

Grâce au caractère quasiclassique du champ laser ($\Delta n \ll \bar{n}$), on peut donc négliger cette variation et considérer que tous les v_n sont égaux

$$v_n = -dE_0 \sqrt{\bar{n}} \quad (I-1.17)$$

Dans la région qui nous intéresse, le diagramme d'énergie apparaît donc périodique : toutes les multiplicités sont identiques.

On remarque enfin que les couplages v_n (tous égaux maintenant) sont reliés directement à la fréquence de Rabi ω_1 . En effet (d'après I-1.15 et I-1.17)

$$v_n = -d \mathcal{E} / 2 = \omega_1 / 2 \quad (I-1.18)$$

A partir de maintenant, nous utiliserons cette relation pour exprimer les états propres (Eq I-1.8) en fonction de ω_1 et δ .

$$|1, n\rangle = \cos \theta |e, n\rangle + \sin \theta |g, n+1\rangle \quad (1-1.19)$$

$$|2, n\rangle = -\sin \theta |e, n\rangle + \cos \theta |g, n+1\rangle$$

$$\text{avec } \tan 2\theta = -\omega_1/\delta \quad (1-1.20)$$

De même pour l'écart en énergie Ω entre $|1, n\rangle$ et $|2, n\rangle$

$$\Omega = (\delta^2 + \omega_1^2)^{1/2} \quad (1-1.21)$$

La précession de Rabi retrouvée dans ce point de vue

Supposons par exemple que l'atome habillé soit à l'instant $t=0$ dans l'état

$$|\psi(0)\rangle = |g, n+1\rangle = \sin \theta |1, n\rangle + \cos \theta |2, n\rangle \quad (1-1.22)$$

Son état à l'instant t est

$$|\psi(t)\rangle = \sin \theta \exp(-i\Omega t/2) |1, n\rangle + \cos \theta \exp(i\Omega t/2) |2, n\rangle \quad (1-1.23)$$

On peut en déduire en particulier la probabilité pour qu'il soit dans $|e, n\rangle$ à l'instant t :

$$|\langle e, n | \psi(t) \rangle|^2 = 2 \cos^2 \theta \sin^2 \theta (1 - \cos \Omega t) \quad (1-1.24)$$

On retrouve ainsi simplement la précession de Rabi de fréquence Ω . En particulier, à résonance ($\delta=0$), la fréquence d'oscillation est ω_1 (fréquence de Rabi). La valeur maximale de $|\langle e, n | \psi(t) \rangle|^2$ est :

$$|\langle e, n | \psi(t) \rangle|_{\max}^2 = 4 \cos^2 \theta \sin^2 \theta = \omega_1^2 / (\omega_1^2 + \delta^2) \quad (1-1.25)$$

et ne vaut 1 qu'à résonance ($\delta=0$)

Remarque :

La précession de Rabi correspond en fait à la superposition des précessions correspondant à chaque multiplicité. Si l'on avait tenu compte de la variation avec n de ν_n , on aurait obtenu une dispersion des fréquences de Rabi et donc un certain amortissement de la précession de Rabi [Dc]. On peut se convaincre aisément que cet effet est négligeable. En effet la dispersion de ω_1 correspond à la dispersion ΔE des valeurs du champ laser E . Or dans un état cohérent, ΔE est le même que dans le vide ($\Delta E = E_0$). L'effet de la dispersion de ω_1 est donc identique à l'effet des fluctuations du vide dans le mode laser. Il est

donc non seulement négligeable devant l'interaction atome-laser mais aussi devant l'effet des fluctuations du vide dans tous les modes vides beaucoup plus nombreux, effet dont nous allons tenir compte plus loin en étudiant la relaxation radiative de l'atome habillé. L'approximation quasi classique est donc très bien justifiée.

1.1.4 La fluorescence considérée comme une cascade radiative de l'atome habillé

Nous avons traité le couplage atome-laser en diagonalisant l'hamiltonien H_{AL} de l'atome habillé. Nous nous intéressons maintenant au couplage entre l'atome et les modes vides du rayonnement (voir Fig 1-1.1). Ce couplage est responsable de l'émission des photons de fluorescence que l'on considère dans notre point de vue comme les photons émis spontanément par l'atome habillé. Il nous faut pour cela chercher quelles sont les transitions permises entre niveaux de l'atome habillé donc étudier les éléments de matrice du moment dipolaire électrique D .

Les éléments de matrice du dipole D entre les niveaux de l'atome habillé

Le mouvement dipolaire D est un opérateur purement atomique impair qui couple les deux états atomiques e et g de parités opposées:

$$d = \langle g | D | e \rangle = \langle e | D | g \rangle \quad (1-1.26)$$

L'opérateur D ne change donc pas le nombre n de photons laser et les seuls éléments de matrice non nuls dans la base découplée sont (avec leurs éléments conjugués)

$$\langle g, n | D | e, n \rangle = d \quad (1-1.27)$$

Les deux états $|g, n\rangle$ et $|e, n\rangle$ appartiennent à deux multiplicités adjacentes $\mathcal{E}_{n-1}$ et $\mathcal{E}_n$ de l'atome habillé. Lorsqu'on diagonalise le couplage V_{AL} dans chacune de ces multiplicités (expression (1-1.19) des états propres) on obtient les éléments de matrice entre les états propres

$$d_{ij} = \langle i, n-1 | D | j, n \rangle \quad (1-1.28)$$

$$d_{ij} = \langle i, n-1 | g, n \rangle d \langle e, n | j, n \rangle \quad (1-1.29)$$

soit $d_{11} = -d_{22} = d \cos \theta \sin \theta \quad (1-1.30)$

$$d_{12} = -d \sin^2 \theta \quad d_{21} = d \cos^2 \theta$$

Le triplet de fluorescence

Toutes les transitions entre un état $|j, n\rangle$ de $\mathcal{E}_n$ et un état $|i, n-1\rangle$ de $\mathcal{E}_{n-1}$ sont donc des transitions dipolaires électriques permises. L'atome habillé émet donc des photons de fluorescence à toutes les fréquences correspondant à ces transitions (Fig 1-1.4)

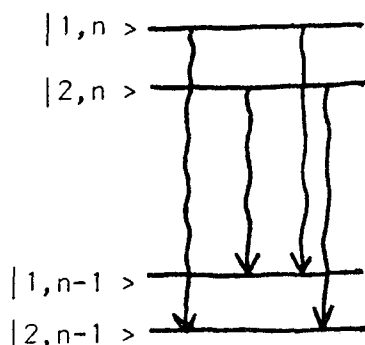


Figure 1-1.4 Fréquences d'émission de l'atome habillé

$$\begin{array}{ll}
 |1, n\rangle \rightarrow |2, n-1\rangle & \text{fréquence } \omega_L + \Omega \\
 |2, n\rangle \rightarrow |1, n-1\rangle & \omega_L - \Omega \\
 |1, n\rangle \rightarrow |1, n-1\rangle & \left. \vphantom{\begin{array}{l} |1, n\rangle \rightarrow |2, n-1\rangle \\ |2, n\rangle \rightarrow |1, n-1\rangle \end{array}} \right\} \omega_L \\
 |2, n\rangle \rightarrow |2, n-1\rangle &
 \end{array}$$

On comprend donc immédiatement dans le point de vue de l'atome habillé la structure de triplet du spectre de fluorescence et la position des trois raies $\omega_L + \alpha\Omega$ ($\alpha=0, \pm 1$).

Le dégroupement de photons

On comprend aussi très bien le phénomène de dégroupement de photons dans ce point de vue. En effet si l'on se place dans la base découplée (Fig. 1-1.5a), il est clair que l'émission d'un photon de fluorescence correspond à une transition de l'atome habillé entre deux états ($|e, n+1\rangle$ et $|g, n+1\rangle$ par exemple) qui sont des superpositions d'états propres (et non pas des états propres eux-mêmes). Si l'atome habillé émet un photon à l'instant t , il se trouve "projeté" dans l'état $|g, n+1\rangle$ et il ne peut émettre un autre photon immédiatement après. La probabilité d'émission d'un second photon à l'instant $t+\tau$ reproduit la précession de Rabi de l'atome habillé passant de $|g, n+1\rangle$ à $|e, n\rangle$ par absorption ou émission stimulée de photons laser.

Les deux aspects complémentaires de la fluorescence

L'analyse temporelle (dégroupement) et l'analyse spectrale (triplet) constituent des analyses complémentaires de la fluorescence : dans la

première, on mesure précisément le temps d'émission des photons sans faire aucune sélection spectrale : dans la seconde on mesure au contraire la fréquence des photons émis et l'on perd toute information sur le temps d'émission. Le signal d'analyse temporelle s'interprète bien en représentant l'émission spontanée de l'atome habillé dans la base découplée (Fig 1-1.5a) alors que le signal d'analyse spectrale se comprend bien dans la base couplée (Fig 1-1.5b).

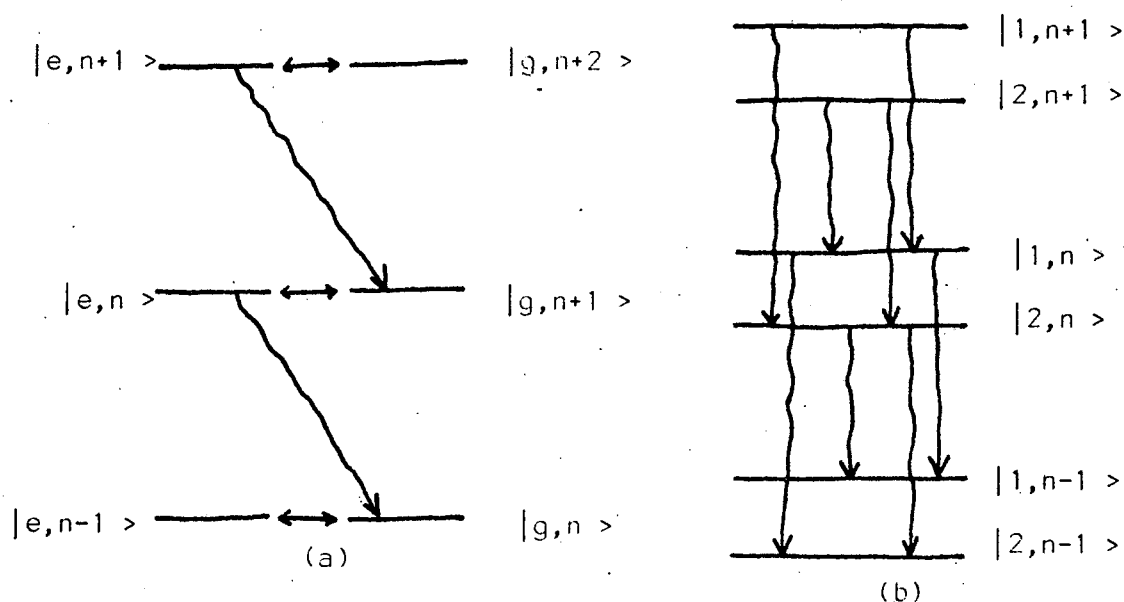


Figure 1-1.5 : La cascade radiative de l'atome habillé représentée dans la base découplée (a) et dans la base couplée (b).

On verra plus loin (§ 1-3) que la représentation dans la base couplée (Fig 1-1.5b) suggère l'existence de signaux correspondant à une analyse mixte de la fluorescence : on peut étudier par exemple les corrélations temporelles entre photons préalablement filtrés en fréquence (les largeurs d'analyse $\Delta\nu$ et Δt en fréquence et en temps étant bien sur limitées par la relation $\Delta\nu \Delta t > 1$).

La cascade radiative de l'atome habillé

Il est intéressant d'étudier plus en détail l'évolution temporelle de l'atome habillé (voir Fig 1-1-5a). Partant par exemple de $|g, n+2\rangle$, l'atome habillé évolue vers $|e, n+1\rangle$ par la précession de Rabi. Il émet alors un photon de fluorescence en effectuant une transition vers $|g, n+1\rangle$.

Puis il précède vers $|e, n\rangle$, saute dans $|g, n\rangle$, ...etc. L'évolution temporelle de l'atome habillé apparaît donc comme une suite d'évolutions réversibles à l'intérieur d'une multiplicité (précession de Rabi) séparées par des sauts irréversibles d'une multiplicité à l'autre (émission de photons de fluorescence). Ce processus dans lequel l'atome habillé descend le long de son diagramme d'énergie en émettant des photons de fluorescence peut être appelé la cascade radiative de l'atome habillé par analogie avec les cascades radiatives atomiques et nucléaires [Dd]. Cette cascade concerne toutefois un système quantique, l'atome habillé, dont le diagramme d'énergie est beaucoup plus riche que celui d'un système atomique ou nucléaire habituel : ce diagramme peut en particulier être considéré comme périodique et infini.

1-1.5 Comment étudier quantitativement la fluorescence

Notre but est maintenant de montrer que le point de vue de l'atome habillé permet une étude quantitative de la fluorescence

Nous décrirons l'état du système total "atome + mode laser + modes de rayonnement" par une matrice densité $\sigma_{ALR}(t)$. On sait que l'on peut définir deux matrices densités réduites, relatives l'une à l'atome habillé, l'autre au rayonnement, obtenues par trace partielle :

$$\sigma_{AL}(t) = \text{Tr}_R \sigma_{ALR}(t) \quad (1-1.31)$$

$$\sigma_R(t) = \text{Tr}_{AL} \sigma_{ALR}(t) \quad (1-1.32)$$

L'émission spontanée est responsable de deux phénomènes étroitement liés : d'une part, la cascade radiative de l'atome habillé descendant le long de son diagramme d'énergie (évolution de $\sigma_{AL}(t)$ à partir de l'état initial de l'atome habillé $\sigma_{AL}(0)$) ; d'autre part, l'émission de photons de fluorescence dans les modes du rayonnement (évolution de $\sigma_R(t)$ à partir de l'état initial $\sigma_R(0)$ qui est le vide de rayonnement)

Complexité de $\sigma_R(t)$

Plusieurs caractéristiques importantes de la fluorescence, qui apparaissent clairement dans la discussion du paragraphe précédent (§ 1-1.1), montrent la complexité de la matrice densité $\sigma_R(t)$ décrivant l'état du rayonnement:

(i) la fluorescence est un phénomène fondamentalement non stationnaire ; des photons sont transférés en permanence du mode laser vers les modes vides (pas d'état stationnaire pour $\sigma_R(t)$)

(ii) On ne peut considérer la fluorescence comme une suite d'évènements indépendants : l'atome habillé émet une suite ininterrompue de photons corrélés entre eux ($\sigma_R(t)$ doit contenir des corrélations entre de nombreux photons).

(iii) L'aspect spectral et l'aspect temporel de la fluorescence sont complémentaires. Ils correspondent en particulier à des expériences différentes. Mais $\sigma_R(t)$ doit contenir les deux aspects

Ces caractéristiques pourraient laisser penser que l'étude de la fluorescence devrait nécessairement être très complexe. Nous allons voir au contraire que l'on peut étudier la fluorescence avec une méthode relativement simple en évitant en particulier d'avoir à calculer $\sigma_R(t)$.

La méthode utilisée dans ce travail

La méthode que nous exposons dans la partie I consiste à étudier d'abord la cascade radiative de l'atome habillé en traitant l'évolution de $\sigma_{AL}(t)$ par la théorie de la relaxation [De]. En effet nous nous trouvons devant un problème qui est très général : l'évolution d'un système ayant un petit nombre de degrés de liberté (ici l'atome habillé) couplé à un "réservoir" ayant un très grand nombre de degrés de liberté (ici les modes vides du rayonnement).

Le temps de corrélation τ_c de l'interaction V_{AR} entre l'atome et le vide de rayonnement (voir Fig I-1.1) est très court et la condition de rétrécissement par le mouvement est satisfaite.

$$V_{AR} \tau_c \ll 1 \quad (I-1.33)$$

Cette condition signifie que l'on peut traiter perturbativement l'effet du couplage V_{AR} pendant le temps de corrélation τ_c . On peut alors décrire l'évolution de $\sigma_{AL}(t)$ par une équation pilote. Nous écrivons cette équation pilote et nous la discutons dans le chapitre I-2.

On aborde ensuite l'étude de la fluorescence dans le § I-3 en montrant que les signaux de fluorescence s'expriment comme des fonctions de corré-

ation du dipole atomique et qu'ils sont calculables à partir de l'équation pilote de σ_{AL} .

La méthode est généralisée dans le § 1-4 pour inclure dans l'équation pilote des termes décrivant la relaxation collisionnelle et pour en déduire l'effet des collisions sur les signaux de fluorescence.

Enfin nous discutons les conditions de validité de la présente approche en les comparant aux conditions de validité de l'approche utilisant les équations de Bloch optiques (§ 1-5)

C H A P I T R E 1-2

LA RELAXATION RADIATIVE DE L'ATOME HABILÉ

Dans ce chapitre, nous écrivons l'équation pilote décrivant l'évolution de la matrice densité de l'atome habillé que nous notons désormais σ (au lieu de σ_{AL}). Nous discutons cette équation et nous la résolvons dans le cas où les raies sont bien séparées.

1-2.1 L'équation pilote décrivant la relaxation radiative :

La forme opératorielle

Appliquant la théorie générale de la relaxation à notre problème, on montre que l'on peut donner à l'équation pilote une forme opératorielle [An 1]

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \sigma = & -i [H_{AL}, \sigma] \\ & - \frac{K}{2} (D^+ D^- \sigma + \sigma D^+ D^-) \\ & + K D^- \sigma D^+ \end{aligned} \quad (1-2.1)$$

où σ est la matrice densité de l'atome habillé, D^+ et D^- les parties ascendante et descendante de l'opérateur dipole ($D^+ = d |e\rangle \langle g|$; $D^- = d |g\rangle \langle e|$) et K un facteur constant qui est le même que dans l'équation

$$\Gamma = K d^2 \quad (1-2.2)$$

reliant la largeur naturelle Γ au carré du dipole.

L'équation pilote dans la base découplée

Les termes décrivant la relaxation ont une interprétation tout à fait naturelle si on les écrit dans la base découplée. Ecrivons par exemple l'évolution des populations due à ces termes. Les termes des deuxième et troisième

lignes de (1-2.1) donnent respectivement pour contributions

$$\frac{d}{dt} \langle e, n | \sigma | e, n \rangle = - \Gamma \langle e, n | \sigma | e, n \rangle \quad (1-2.3)$$

$$\frac{d}{dt} \langle g, n | \sigma | g, n \rangle = \Gamma \langle e, n | \sigma | e, n \rangle \quad (1-2.4)$$

Ces termes décrivent l'amortissement de la population de l'état $|e, n\rangle$ par émission spontanée et l'alimentation de l'état $|g, n\rangle$ qui en résulte (par conservation de la population totale). On peut obtenir aussi l'amortissement d'une cohérence entre deux niveaux de l'atome habillé, par exemple $|e, n\rangle$ et $|g, n\rangle$

$$\frac{d}{dt} \langle e, n | \sigma | g, n \rangle = - \frac{\Gamma}{2} \langle e, n | \sigma | g, n \rangle \quad (1-2.5)$$

On peut remarquer que la relaxation des états habillés affecte seulement les degrés de liberté atomiques (les photons laser sont en quelque sorte "spectateurs") et les affecte exactement de la même façon que s'il n'y avait pas d'irradiation laser. Ceci signifie que la relaxation radiative de l'atome est la même qu'en l'absence d'irradiation laser et que l'équation pilote peut être obtenue en ajoutant indépendamment l'effet du couplage atome laser et celui de la relaxation radiative. Nous reviendrons sur ce point dans le paragraphe 1-5 et montrerons que ceci résulte d'une approximation qui est parfaitement justifiée pour la relaxation radiative (avec nos hypothèses ω_1 , $\delta \ll \omega_0$) mais qui peut ne pas être justifiée pour d'autres types de relaxation (collisionnelle par exemple).

1-2.2 Les équations décrivant la cascade de l'atome habillé :

On peut déduire de l'équation pilote (1-2.1) des équations décrivant quantitativement la cascade radiative de l'atome habillé. Appelons σ_n la matrice densité restreinte à la multiplicité $\mathcal{E}_n$ (donc de dimension 2). L'équation d'évolution de σ_n s'écrit :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \sigma_n &= -i [H_{AL}, \sigma_n] \\ &- \frac{K}{2} (D^+ D^- \sigma_n + \sigma_n D^+ D^-) \\ &+ K D^- \sigma_{n+1} D^+ \end{aligned} \quad (1-2.6)$$

La première ligne décrit la précession de Rabi dans la multiplicité $\mathfrak{E}_n$, la deuxième l'amortissement de σ_n par émission spontanée, la troisième l'alimentation de la multiplicité $\mathfrak{E}_n$ due à l'amortissement de la multiplicité $\mathfrak{E}_{n+1}$. L'équation d'évolution de la trace de σ_n (qui est aussi la population totale de $\mathfrak{E}_n$) est encore plus simple.

$$\frac{d}{dt} \text{Tr } \sigma_n = -K \text{Tr } D^+ D^- \sigma_n + K \text{Tr } D^+ D^- \sigma_{n+1} \quad (1-2.7)$$

(en effet $\text{Tr} [H_{AL}, \sigma_n] = 0$: la précession de Rabi ne change pas la population de $\mathfrak{E}_n$; on a utilisé l'invariance d'une trace par permutation circulaire)

$$\frac{d}{dt} \text{Tr } \sigma_n = -\Gamma \langle e, n | \sigma | e, n \rangle + \Gamma \langle e, n+1 | \sigma | e, n+1 \rangle \quad (1-2.8)$$

(en effet $K D^+ D^- = K d^2 | e \rangle \langle g | | g \rangle \langle e | = \Gamma | e \rangle \langle e |$)

La population totale de la multiplicité $\mathfrak{E}_n$ diminue à cause des transitions vers $\mathfrak{E}_{n-1}$ (nombre de transitions par unité de temps $\Gamma \langle e, n | \sigma | e, n \rangle$) et augmente à cause des transitions de $\mathfrak{E}_{n+1}$ vers $\mathfrak{E}_n$ (nombre $\Gamma \langle e, n+1 | \sigma | e, n+1 \rangle$) (Fig 1-2.1).

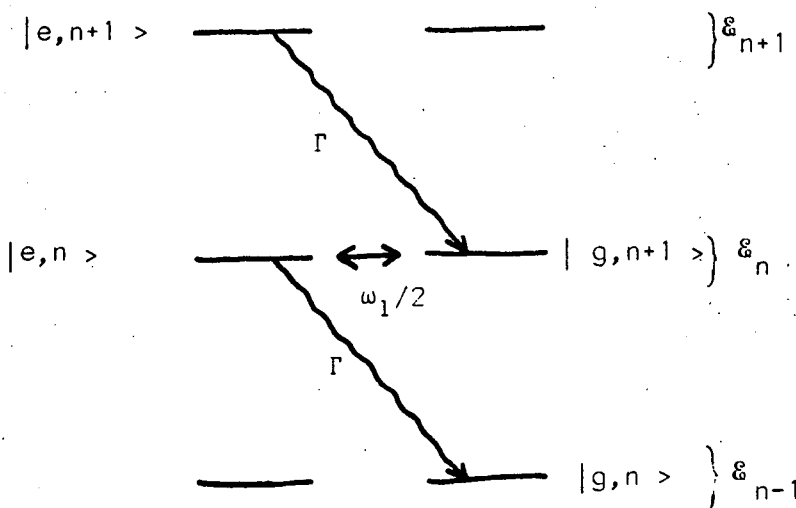


Figure 1-2.1 Evolution de la matrice densité σ_n restreinte à la multiplicité $\mathfrak{E}_n$.

1-2.3 L'équation pilote dans la base couplée :

L'approximation séculaire

Nous allons maintenant écrire l'équation pilote dans la base des états propres de l'atome habillé. L'avantage de cette base est que l'hamiltonien H_{AL} y est diagonalisé. Les éléments de matrice de σ évoluent donc chacun à une certaine fréquence de Bohr. Par exemple, les populations

$$\pi_{i,n} = \langle i,n | \sigma | i,n \rangle \quad (1-2.9)$$

n'évoluent pas sous l'action de l'hamiltonien (fréquence 0) mais les cohérences entre les deux états d'une multiplicité évoluent aux fréquences $\pm\Omega$.

Nous nous limiterons ici au cas où les raies sont bien séparées

$$\Omega \gg \Gamma$$

(écart entre les raies $\gg$ largeur des raies). Cette condition est réalisée soit quand le champ est intense ($\omega_1 \gg \Gamma$) soit quand l'excitation n'est pas résonnante ($\delta \gg \Gamma$).

L'équation pilote peut alors être beaucoup simplifiée. On peut négliger tous les couplages entre éléments de la matrice densité évoluant à des fréquences différentes (couplages non séculaires) et obtenir ainsi des ensembles d'équations couplant seulement les éléments de matrice de σ évoluant à la même fréquence de Bohr.

Evolution des populations

On obtient ainsi à partir de l'équation pilote (1-2.1) un ensemble d'équations couplées décrivant l'évolution des populations de l'atome habillé

$$\frac{d}{dt} \pi_{1,n} = -(\Gamma_{11} + \Gamma_{21})\pi_{1,n} + \Gamma_{11}\pi_{1,n+1} + \Gamma_{12}\pi_{2,n+1} \quad (1-2.11)$$

$$\frac{d}{dt} \pi_{2,n} = -(\Gamma_{12} + \Gamma_{22})\pi_{2,n} + \Gamma_{21}\pi_{1,n+1} + \Gamma_{22}\pi_{2,n+1}$$

$$\text{avec } \pi_{i,n} = \langle i,n | \sigma | i,n \rangle \quad (1-2.12)$$

$$\text{et } \Gamma_{ij} = K (d_{ij})^2 \quad (1-2.13)$$

Ces équations ont une interprétation évidente en termes de taux de transition : par exemple la population $\pi_{1,n}$ diminue à cause des transitions de $|1,n\rangle$ vers les niveaux inférieurs avec un taux total

$$\Gamma_1 = \Gamma_{11} + \Gamma_{21} \quad (1-2.14)$$

et augmente à cause des transitions de la multiplicité supérieure vers $|1,n\rangle$ (de $|1,n+1\rangle$ avec un taux Γ_{11} et de $|2,n+1\rangle$ avec un taux Γ_{12}) (Fig 1-2.2)

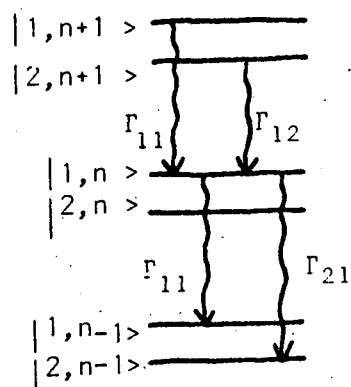


Figure 1-2.2 Evolution de la population $\pi_{1,n}$

Les taux de transition Γ_{ij} peuvent être déduits des expressions (1-1.30) des éléments de matrice du dipôle

$$\begin{aligned} \Gamma_{11} &= \Gamma_{22} = \Gamma \cos^2 \theta \sin^2 \theta \\ \Gamma_{12} &= \Gamma \sin^4 \theta \quad \Gamma_{21} = \Gamma \cos^4 \theta \\ \Gamma_1 &= \Gamma \cos^2 \theta \quad \Gamma_2 = \Gamma \sin^2 \theta \end{aligned} \quad (1-2.15)$$

Transferts de cohérence

On peut déduire également de l'équation pilote (1-2.1) les équations d'évolution des cohérences entre niveaux d'une même multiplicité

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \langle 1, n | \sigma | 2, n \rangle &= -i\Omega \langle 1, n | \sigma | 2, n \rangle \\ &\quad - \frac{1}{2} (\Gamma_1 + \Gamma_2) \langle 1, n | \sigma | 2, n \rangle \\ &\quad + K d_{11} d_{22} \langle 1, n+1 | \sigma | 2, n+1 \rangle \end{aligned} \quad (1-2.16)$$

En plus de l'évolution hamiltonienne à la fréquence Ω (première ligne) et de l'amortissement par émission spontanée (deuxième ligne), ces équations contiennent (troisième ligne) des transferts de cohérence entre multiplicités (Fig 1-2.3)

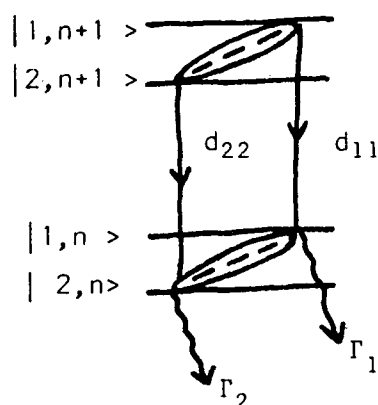


Figure 2-2.3 : Evolution de la cohérence

$\langle 1, n | \sigma | 2, n \rangle$: amortissement avec un taux $(\Gamma_1 + \Gamma_2)/2$ et transfert depuis la multiplicité supérieure avec un taux $K d_{11} d_{22}$.

De tels transferts de cohérence jouent un rôle important dans l'émission spontanée de l'oscillateur harmonique qui a lui aussi un diagramme d'énergie périodique [Df]. Nous reviendrons dans le § 1-3 sur leur rôle dans la détermination des largeurs des raies

1-2.4 L'équation pilote réduite

Du fait de la périodicité du diagramme d'énergie (voir § 1-1.3), les différentes multiplicités $\mathcal{E}_n$ de l'atome habillé sont identiques. Elles contribuent donc de la même façon aux signaux (ce que l'on vérifiera dans le § 1-3). Il est donc intéressant d'étudier la matrice ρ obtenue en sommant les matrices σ_n

$$\rho = \sum_n \sigma_n \quad (1-2.17)$$

On obtient immédiatement l'équation d'évolution de ρ en sommant les équations d'évolution des σ_n (1-2.6)

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \rho &= -i [H_{AL}, \rho] \\ &\quad - \frac{K}{2} (D^+ D^- \rho + \rho D^+ D^-) \\ &\quad + K D^- \rho D^+ \end{aligned} \quad (1-2.18)$$

Interprétation des équations de Bloch optiques dans notre point de vue

La matrice ρ est une matrice 2×2 (comme les σ_n). On peut l'associer à un spin $1/2$. Plus précisément, nous appellerons $| + \rangle$ et $| - \rangle$ les deux états du spin et nous définirons les composantes du spin par les relations

$$\begin{aligned} s_+ &= \langle + | \rho | - \rangle = \sum_n \langle e, n | \sigma | g, n+1 \rangle \\ s_- &= \langle - | \rho | + \rangle = \sum_n \langle g, n+1 | \sigma | e, n \rangle \\ s_z &= \frac{1}{2} (\langle + | \rho | + \rangle - \langle - | \rho | - \rangle) \\ &= \frac{1}{2} \sum_n (\langle e, n | \rho | e, n \rangle - \langle g, n+1 | \rho | g, n+1 \rangle) \end{aligned} \quad (1-2.19)$$

On peut déduire de (1-2.18) des équations d'évolution pour les trois composantes du spin. On vérifie aisément que ces équations sont identiques aux équations de Bloch optiques.

En particulier les termes de relaxation s'écrivent simplement

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} s_{\pm} &= - \frac{\Gamma}{2} s_{\pm} \\ \frac{d}{dt} s_z &= - \Gamma (s_z + \frac{1}{2}) \end{aligned} \quad (1-2.20)$$

Nous pouvons ainsi identifier les équations de Bloch optiques avec l'équation pilote réduite (1-2.18). Le modèle du spin fictif consiste en quelque sorte à "condenser" toutes les multiplicités de l'atome habillé en une seule multiplicité à deux niveaux $| + \rangle$ et $| - \rangle$ (la "condensation" étant définie mathématiquement par l'équation 1-2.17. définissant ρ ou par les équations 1-2.19).

Le fait d'avoir condensé toutes les multiplicités en une seule interdit de séparer les termes correspondant à l'évolution dans une multiplicité et ceux correspondant à des transferts entre multiplicités : l'équation (1-2.18) ne décrit plus la cascade de l'atome habillé. Une conséquence importante en est que l'équation (1-2.18) admet un état stationnaire alors que les équations

(1-2.6) décrivant la cascade n'en ont pas. Nous revenons sur ce point plus loin (§ 1-2.5) pour montrer que l'on peut parler d'un état de cascade stationnaire.

L'équation pilote réduite dans la base couplée

On peut définir des populations réduites π_i ($i=1,2$) et des cohérences réduites ρ_{ij} par les relations

$$\pi_i = \sum_n \pi_{i,n} \quad (1-2.21)$$

$$\rho_{12} = \sum_n \langle 1,n | \sigma | 2,n \rangle \quad (1-2.22)$$

Leurs équations d'évolution sont obtenues en sommant les équations d'évolution des populations (Eq. 1-2.11) ou des cohérences (1-2.16)

Evolution des populations réduites

On obtient pour les populations réduites

$$\frac{d}{dt} \pi_1 = -\Gamma_{21} \pi_1 + \Gamma_{12} \pi_2 \quad (1-2.23)$$

$$\frac{d}{dt} \pi_2 = \Gamma_{21} \pi_1 - \Gamma_{12} \pi_2$$

En particulier les transitions $|i,n+1\rangle \rightarrow |i,n\rangle$ n'apparaissant pas dans ces équations parce qu'elles ne modifient pas les populations réduites. Les populations réduites stationnaires sont "déterminées" par les deux équations

$$\pi_1(\infty) + \pi_2(\infty) = 1 \quad (1-2.24)$$

et

$$\Gamma_{21} \pi_1(\infty) = \Gamma_{12} \pi_2(\infty) \quad (1-2.25)$$

La première est une condition de normalisation de la population totale. La deuxième est la condition du "bilan détaillé" qui signifie que le nombre total de transitions $|1,n+1\rangle \rightarrow |2,n\rangle$ équilibre le nombre total de transitions $|2,n\rangle \rightarrow |1,n-1\rangle$. On obtient en résolvant ces deux équations :

$$\begin{aligned} \pi_1(\infty) &= \Gamma_{12} / (\Gamma_{12} + \Gamma_{21}) = \sin^4 \theta / (\cos^4 \theta + \sin^4 \theta) \\ \pi_2(\infty) &= \Gamma_{21} / (\Gamma_{12} + \Gamma_{21}) = \cos^4 \theta / (\cos^4 \theta + \sin^4 \theta) \end{aligned} \quad (1-2.26)$$

On déduit de (1-2.22) l'équation

$$\frac{d}{dt} (\Gamma_{21}\pi_1 - \Gamma_{12}\pi_2) = -(\Gamma_{12} + \Gamma_{21}) (\Gamma_{21}\pi_1 - \Gamma_{12}\pi_2) \quad (1-2.27)$$

qui signifie que le régime transitoire des populations réduites vers leur état stationnaire (1-2.26) est une exponentielle dont la constante de temps, τ_{pop} , vaut :

$$\tau_{\text{pop}} = (\Gamma_{12} + \Gamma_{21})^{-1} = \Gamma^{-1} (\cos^4 \theta + \sin^4 \theta)^{-1} \quad (1-2.28)$$

Plus précisément, les populations transitoires s'expriment en fonction des populations initiales $\pi_i(0)$ et des populations stationnaires $\pi_i(\infty)$ sous la forme :

$$\pi_i(\tau) = \pi_i(\infty) + (\pi_i(0) - \pi_i(\infty)) \exp(-\tau/\tau_{\text{pop}}) \quad (1-2.29)$$

Evolution des cohérences réduites

L'équation d'évolution de la cohérence réduite ρ_{12} s'écrit simplement :

$$\frac{d}{dt} \rho_{12} = (-i\Omega - (\tau_{\text{coh}})^{-1}) \rho_{12} \quad (1-2.30)$$

avec :

$$\begin{aligned} (\tau_{\text{coh}})^{-1} &= \frac{1}{2} (\Gamma_1 + \Gamma_2) - K d_{11} d_{22} \\ &= \Gamma \left(\frac{1}{2} + \cos^2 \theta \sin^2 \theta \right) \end{aligned} \quad (1-2.31)$$

L'oscillation de ρ_{12} à la fréquence Ω est donc exponentiellement amortie vers 0, le temps d'amortissement étant τ_{coh}

$$\rho_{12}(\tau) = \rho_{12}(0) \exp(-i\Omega\tau) \exp(-\tau/\tau_{\text{coh}}) \quad (1-2.32)$$

1-2.5 L'état de cascade stationnaire

On est maintenant en mesure de décrire complètement l'évolution dans le temps de la matrice densité σ de l'atome habillé.

L'état initial de la matrice densité

Supposons par exemple que l'on "branche" l'interaction atome laser à l'instant $t=0$. L'atome est dans l'état $|g\rangle$ et la matrice densité du mode laser est σ_L . L'état initial de l'atome habillé est donc

$$\sigma(0) = |g\rangle\langle g| \otimes \sigma_L \quad (1-2.33)$$

En particulier la matrice densité σ_n restreinte à la multiplicité $\mathcal{E}_n$ est :

$$\sigma_n(0) = |g, n+1\rangle\langle g, n+1| p_0(n+1) \quad (1-2.34)$$

où

$$p_0(n) = \langle n | \sigma_L | n \rangle \quad (1-2.35)$$

est la distribution du nombre de photons n dans le mode laser. Nous avons déjà discuté le caractère quasiclassique de l'état du mode laser (§ 1-1.5) : la distribution $p_0(n)$ a une dispersion Δn très grande en valeur absolue, mais très petite devant la valeur moyenne $\bar{n}$ ($1 \ll \Delta n \ll \bar{n}$ condition 1-1.11).

Evolution de la matrice densité

L'évolution de σ peut alors se décrire en superposant deux phénomènes : d'une part la matrice densité réduite ρ évolue pendant un temps de l'ordre de Γ^{-1} de son état initial $\rho(0)$ vers son état final (cohérences nulles, populations réduites données par 1-2.26) ; d'autre part la distribution $p_0(n)$ du nombre de photons laser se déplace lentement vers le bas du diagramme d'énergie à cause de l'émission de photons de fluorescence.

Mais même si on laisse à l'atome le temps d'émettre un grand nombre de photons, ce nombre sera toujours petit devant le nombre $\bar{n}$ de photons dans le mode (et même devant la dispersion $\Delta n \sim \sqrt{\bar{n}}$ de ce nombre), et la modification correspondante de l'état du laser sera négligeable. Autrement dit, l'effet de la fluorescence sur la distribution du nombre de photons dans le mode laser sera négligeable et on pourra écrire :

$$\sigma_n(t) = \rho(t) p_0(n) \quad (1-2.36)$$

Après un temps de l'ordre de Γ^{-1} correspondant à l'émission de quelques photons, la matrice densité de l'atome habillé n'évolue plus : les cohérences sont nulles et les populations égales à :

$$\pi_{i,n} = \pi_i p_0(n) \quad (1-2.37)$$

(π_i populations réduites stationnaires (1-2.26))

Le lent déplacement de la distribution $p_0(n)$ dont nous venons de négliger l'effet sur σ a par contre une grande influence sur l'interprétation des signaux puisqu'il correspond à l'émission de photons de fluorescence. Nous verrons en particulier que l'on peut en étudiant ce déplacement étudier la distribution du nombre de photons émis pendant un temps T (§ 1-3.6).

Interprétation de l'état stationnaire comme un équilibre dynamique

Pour finir, il est intéressant d'interpréter l'état stationnaire (1-2.37) comme un équilibre dynamique en revenant à l'équation d'évolution d'une population particulière $\pi_{1,n}$ (Fig 1-2.2). Réécrivons en effet son équation d'évolution (1-2.11) sous la forme :

$$\frac{d}{dt} \pi_{1,n} = -(\Gamma_{11} + \Gamma_{21}) \pi_1 p_0(n) + \Gamma_{11} \pi_1 p_0(n+1) + \Gamma_{12} \pi_2 p_0(n+1) \quad (1-2.38)$$

D'une part $p_0(n)$ et $p_0(n+1)$ sont égaux (puisque $\Delta n \gg 1$) et d'autre part

$\Gamma_{21} \pi_1 = \Gamma_{12} \pi_2$ (condition du bilan détaillé 1-2.25). On voit donc que les transitions $|1, n+1\rangle \rightarrow |1, n\rangle$ et $|1, n\rangle \rightarrow |1, n-1\rangle$ (respectivement $|2, n+1\rangle \rightarrow |1, n\rangle$ et $|1, n\rangle \rightarrow |2, n-1\rangle$) s'équilibrent ce qui explique que les populations n'évoluent pas (Fig 1-2.2).

Remarque :

Nous nous sommes limités jusqu'ici à l'étude des éléments de matrice de σ à l'intérieur d'une multiplicité. Nous pouvons aussi décrire l'évolution des autres éléments de matrice. On peut déduire l'état initial de ces éléments de l'expression (1-2.33) de $\sigma(0)$.

En utilisant le fait que la dispersion Δn du nombre de photons dans le mode laser est très grande, on montre ainsi [Ah 1] que

$$\langle i, n | \sigma(0) | j, n-p \rangle = \rho_L^p \langle i, n | \sigma(0) | j, n \rangle \quad (1-2.39)$$

où les ρ_L^p sont des nombres caractérisant l'état du mode laser : pour un état

cohérent $|\alpha\rangle$ (avec $\alpha = \sqrt{n}$) les coefficients ρ_L^p sont égaux à 1 ; pour une superposition d'états cohérents correspondant à des phases équiparties, les coefficients ρ_L^p sont nuls.

On peut maintenant déduire de l'équation pilote (I-2.1) les équations d'évolution de ces éléments $\langle i, n | \sigma(t) | j, n-p \rangle$. On constate alors que les termes de relaxation sont exactement les mêmes que dans les équations d'évolution des $\langle i, n | \sigma(t) | j, n \rangle$ et que la seule différence avec ces équations est dans la fréquence d'évolution propre

$$E_{i,n} - E_{j,n-p} = E_{i,n} - E_{j,n} + p\omega_L \quad (I-2.40)$$

Autrement dit, les équations d'évolution des $\exp(ip\omega_L t) \langle i, n | \sigma(t) | j, n-p \rangle$ sont identiques à celles des $\langle i, n | \sigma(t) | j, n \rangle$.

Utilisant la relation (I-2.39), on obtient finalement

$$\exp(ip\omega_L t) \langle i, n | \sigma(t) | j, n-p \rangle = \rho_L^p \langle i, n | \sigma(t) | j, n \rangle \quad (I-2.41)$$

$$\langle i, n | \sigma(t) | j, n-p \rangle = \langle i, n | \sigma(t) | j, n \rangle \rho_L^p \exp(-ip\omega_L t) \quad (I-2.42)$$

Il suffit maintenant d'introduire dans (I-2.42) les solutions que nous connaissons pour $\langle i, n | \sigma(t) | j, n \rangle$: oscillation amortie des cohérences ($i \neq j$) ; évolution transitoire des populations ($i=j$).

C H A P I T R E 1-3

ETUDE DE DIVERS SIGNAUX DE FLUORESCENCE

Dans ce chapitre, nous montrons que les nombreux signaux de fluorescence que l'on peut étudier peuvent être calculés à partir de l'équation pilote discutée au chapitre précédent. Nous montrons aussi que le point de vue que nous avons adopté (relier la fluorescence à la cascade radiative de l'atome habillé, voir § 1-1) fournit une interprétation très simple des résultats obtenus.

1-3.1 Les signaux de fluorescence

On peut envisager de nombreuses façons d'étudier la fluorescence.

Signaux d'analyse temporelle

Un premier type d'expériences consiste à étudier l'évolution temporelle de l'intensité mesurée par un détecteur (un photomultiplicateur par exemple)

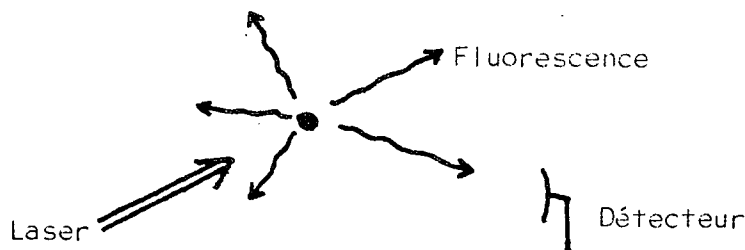


Fig. 1-3.1

Si le détecteur est suffisamment rapide, on observe à sa sortie une suite d'impulsions. Une électronique appropriée sélectionne celles qui dépassent un certain seuil et les calibre de sorte que le signal a l'allure suivante:



Fig 1-3.2

Chaque impulsion calibrée correspond à un événement que l'on peut appeler "détection d'un photon".

La suite d'impulsions de la figure 1-3.2 contient une information très riche et l'on cherche en général à en extraire des signaux plus simples et plus facilement interprétables. Nous discutons maintenant les exemples les plus importants et les plus fréquemment étudiés de tels signaux

(i) Le plus simple de ces signaux est l'intensité moyenne de la fluorescence obtenue en principe en recommençant l'expérience un grand nombre de fois dans les mêmes conditions et en moyennant sur toutes ces expériences. Un moyen beaucoup plus simple consiste à mesurer l'intensité de la fluorescence émise par un grand nombre N d'atomes placés dans les mêmes conditions (les effets collectifs étant supposés négligeables) (Fig 1-3.3)

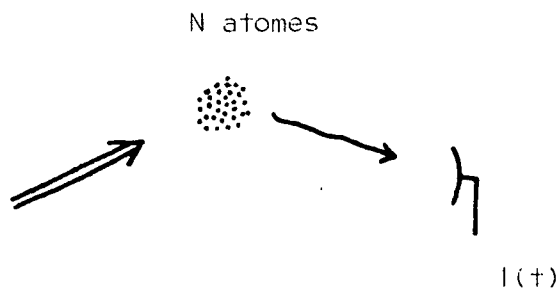


Fig 1-3.3 Etude de l'intensité $I(t)$ de la fluorescence

(ii) Un autre signal très important est le signal de corrélation de photons $C(t+\tau, t)$; $C(t+\tau, t) dt d\tau$ est la probabilité de détecter un photon entre t et $t + dt$ puis un autre entre $t+\tau$ et $t+\tau + d\tau$. La technique la plus courante pour étudier ce signal est une technique "Start-Stop" (Fig 1-3.4)

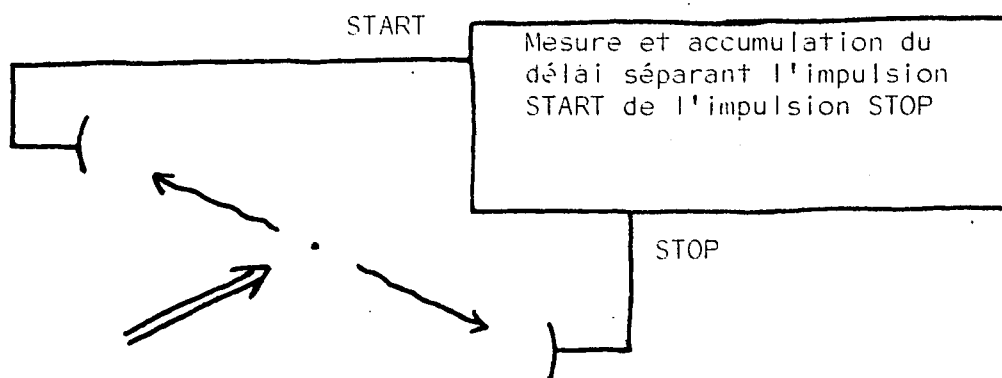


Figure 1-3.4 : Etude des corrélations de photons par une technique "Start-Stop".

Remarque : Avec une technique START-STOP , on mesure en fait une quantité $C'(t+\tau, t)$ que l'on peut définir de la façon suivante : probabilité de détecter un photon à l'instant t puis le suivant à l'instant $t+\tau$. Nous reviendrons plus loin (§ I-3.5) sur la différence entre C et C' et sur la raison pour laquelle cette différence est en général sans importance.

(iii) On étudiera un troisième signal d'analyse temporelle : la distribution $q(m, T)$ du nombre m de photons détectés pendant un intervalle de temps T .

Analyse spectrale

Au lieu de faire une analyse temporelle de la fluorescence, on peut étudier sa répartition spectrale (Fig I-3.5)

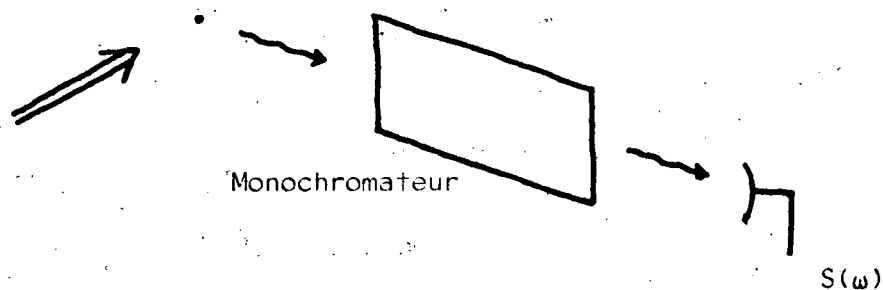


Figure I-3.5 : Analyse spectrale
de la fluorescence

Pour pouvoir analyser les différentes raies du spectre dont la largeur est de l'ordre de Γ il faut que la résolution spectrale $\Delta\omega$ soit petite devant Γ . Le monochromateur va donc "garder" les photons incidents pendant un temps $(\Delta\omega)^{-1}$ plus grand que Γ^{-1} . Lorsqu'on étudie la répartition spectrale, on perd donc l'information relative aux temps d'émission (les analyses spectrale et temporelle sont complémentaires).

Analyse mixte

Il existe une troisième catégorie de signaux de fluorescence correspondant à une analyse mixte temps-fréquence. A la différence des précédents,

ces signaux n'avaient pas été abordés avant le présent travail et leur étude a été suggérée par la méthode de l'atome habillé [Ae.1]. Une telle analyse mixte est possible quand les raies du spectre sont bien séparées. On peut en effet dans ce cas utiliser des filtres centrés sur l'une des raies et ayant une largeur $\Delta\omega$ telle que :

$$\Gamma \ll \Delta\omega \ll \Omega$$

(1-3.1)

Avec de tels filtres, on peut simultanément sélectionner des photons émis dans l'une des trois raies du triplet (puisque $\Delta\omega \ll \Omega$) et étudier la statistique des temps d'émission avec une résolution temporelle $(\Delta\omega)^{-1}$ meilleure que le temps Γ^{-1} caractéristique de la relaxation. On peut ainsi étudier par exemple l'intensité émise dans une raie, les corrélations temporelles entre photons appartenant à une même raie ou à des raies différentes (Fig 1-3.6) la distribution du nombre de photons émis dans une raie donnée pendant un temps T donné.

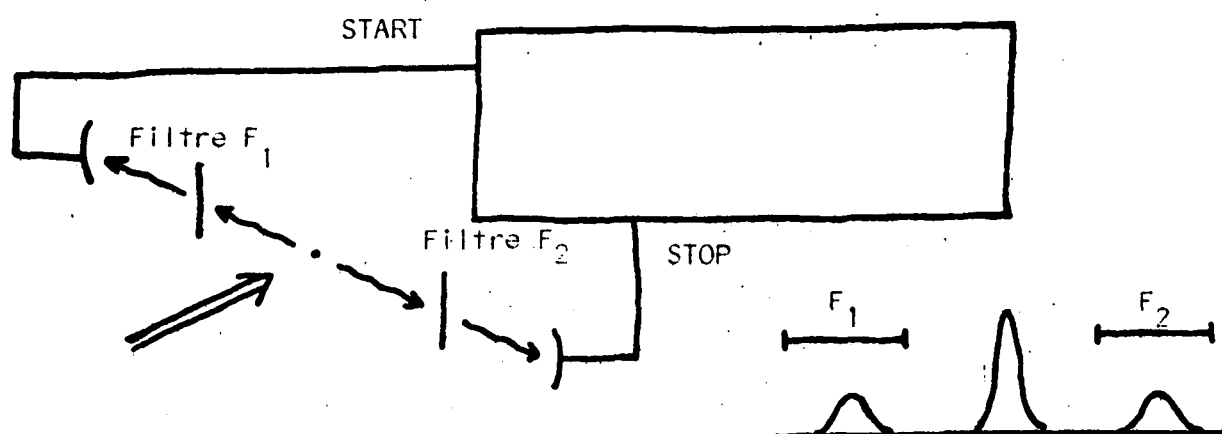


Figure 1-3.6 : Analyse des corrélations temporelles entre les photons émis dans les deux bandes latérales du triplet.

1-3.2 Comment calculer les signaux à partir de l'équation pilote

Nous venons de montrer que l'on pouvait extraire de nombreux signaux de l'étude de la fluorescence. Le problème est maintenant de relier ces signaux au comportement du système émetteur (l'atome habillé) et de montrer en particulier que les signaux peuvent être calculés à partir de l'équation pilote discutée au chapitre 1-2.

Signaux d'analyse temporelle

On peut montrer que les signaux de détection sont reliés aux fonctions de corrélation du dipole atomique. Pour les signaux d'analyse temporelle, il suffit d'utiliser les résultats établis par Glauber [Dg 1] : $I(t)$ et $C(t+\tau, t)$ sont donnés par des fonctions de corrélation du champ électrique

$$I(t) \sim \langle E^-(t) E^+(t) \rangle \quad (1-3.2)$$

$$C(t+\tau, t) \sim \langle E^-(t) E^-(t+\tau) E^+(t+\tau) E^+(t) \rangle \quad (1-3.3)$$

où $E^-(t)$ (resp. $E^+(t)$) est la partie de fréquences négatives (resp. positives) de l'opérateur champ électrique $E(t)$ au point où se trouve le détecteur (et en représentation de Heisenberg).

On suppose bien sur le détecteur placé en un point de l'espace où le champ laser incident est nul. Le champ $E(t)$ est donc une superposition du champ créé par le dipole atomique D et du champ du vide $E_0(t)$ [Ad6] (on suppose ici que l'on étudie la fluorescence d'un seul atome : il faudrait sinon sommer les contributions des différents dipôles atomiques)

$$E^-(t) = \lambda D^+(t-r/c) + E_0^-(t) \quad (1-3.4)$$

$$E^+(t) = \lambda^* D^-(t-r/c) + E_0^+(t)$$

(r est la distance de l'atome émetteur au détecteur). On montre finalement [Dg 2] que si les temps sont bien ordonnés dans les fonctions de corrélation du champ (dans notre cas particulier si $\tau > 0$ dans 1-3.3), alors on peut éliminer E_0 et exprimer les signaux en fonction du dipole atomique seulement.

$$I(t) = k \langle D^+(t) D^-(t) \rangle$$

$$C(t+\tau, t) = k^2 \langle D^+(t) D^+(t+\tau) D^-(t+\tau) D^-(t) \rangle \quad \text{pour } \tau > 0 \quad (1-3.5)$$

(on oublie désormais le retard r/c). Pour des raisons qui apparaîtront plus tard (voir § 1-3.3) nous écrirons le facteur de proportionnalité k sous la forme

$$k = K \zeta \quad (1-3.6)$$

où K est le facteur défini précédemment (par $\Gamma = Kd^2$ voir eq. 1-2.2). Le nouveau paramètre ζ ainsi introduit apparaîtra plus loin comme un "taux de détection" (voir § 1-3.3). Nous obtenons finalement les expressions suivantes pour les signaux d'analyse temporelle :

$$I(t) = K \zeta \langle D^+(t) D^-(t) \rangle \quad (1-3.7)$$

$$C(t+\tau, t) = K^2 \zeta^2 \langle D^+(t) \langle D^+(t+\tau) D^-(t+\tau) D^-(t) \rangle \rangle \quad (\text{pour } \tau > 0)$$

Le spectre de fluorescence

L'expression du spectre de fluorescence $S(\omega)$ peut elle aussi être déduite de (1-3.2). En effet supposons que l'on interpose un filtre en fréquence entre l'atome et le détecteur. La relation (1-3.2) devient :

$$I_f(t) \sim \langle E_f^-(t) E_f^+(t) \rangle \quad (1-3.8)$$

où $E_f(t)$ est le champ filtré

$$E_f^-(t) = \lambda \int_0^\infty D^+(t - \frac{\Gamma}{C} - \tau) g(\tau) d\tau + E_0^-(t) \quad (1-3.9)$$

$$\tilde{E}_f^-(\omega) = \lambda \tilde{D}^+(\omega) \tilde{g}(\omega) + \tilde{E}_0^-(\omega)$$

(les fonctions $g(\tau)$ et $\tilde{g}(\omega)$ transformées de Fourier l'une de l'autre, sont caractéristiques du filtre).

Supposant le phénomène stationnaire (indépendant de t) on peut alors obtenir :

$$I_f = \int_{-\infty}^{\infty} |\tilde{g}(\omega)|^2 S(\omega) d\omega \quad (1-3.10)$$

avec

$$S(\omega) = \frac{K \zeta}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \langle D^+(t+\tau) D^-(t) \rangle \exp(-i\omega\tau) d\tau \quad (1-3.11)$$

$|\tilde{g}(\omega)|^2$ étant la transmission du filtre, l'expression (1-3.10) signifie que $S(\omega)$ est la répartition spectrale de la fluorescence. Si la largeur $\Delta\omega$ du filtre est très petite devant Γ , I_f varie en fonction de ω comme $S(\omega)$. Si par contre la largeur $\Delta\omega$ est beaucoup plus grande que Ω (pas de sélection spectrale) alors

$$I_f = \int_{-\infty}^{\infty} S(\omega) d\omega = K \zeta \langle D^+(t) D^-(t) \rangle \quad (1-3.12)$$

On retrouve l'expression (1-3.7) de l'intensité I

Les signaux d'analyse mixte

On peut finalement donner l'expression des signaux d'analyse mixte. Considérons en effet un filtre de largeur $\Delta\omega$ (telle que $\Gamma \ll \Delta\omega \ll \Omega$) centré sur la fréquence $\omega_L + \alpha\Omega$ ($\alpha = 0, \pm 1$) de l'une des trois raies du spectre et décomposons le dipole atomique en trois composantes D_β correspondant chacune à l'une de ces raies (la définition précise des D_β est donnée au § 1-3.4). On peut

affirmer que le filtre laisse passer la composante D_α de fréquence $\omega_L + \alpha\Omega$ sans la déformer (puisque $\Delta\omega \gg \Gamma$) et supprime les autres composantes D_β ($\beta \neq \alpha$) (puisque $\Delta\omega \ll \Omega$). Le champ filtré est donc simplement :

$$E_f^- = \lambda D_\alpha^+ + E_0^- \quad (1-3.13)$$

On peut finalement exprimer, en fonction des composantes de fréquence du dipole les signaux tels que l'intensité $I_\alpha(t)$ émise dans la raie α et les corrélations temporelles $C_{\beta\alpha}(t+\tau, t)$ entre photons émis dans les raies α et β

$$I_\alpha(t) = K \zeta \langle D_\alpha^+(t) D_\alpha^-(t) \rangle \quad (1-3.14)$$

$$C_{\beta\alpha}(t+\tau, t) = K^2 \zeta^2 \langle D_\alpha^+(t) D_\beta^+(t+\tau) D_\beta^-(t+\tau) D_\alpha^-(t) \rangle \quad (1-3.15)$$

(pour $\tau > 0$)

Le calcul des signaux à partir de l'équation pilote

Nous venons de montrer que les signaux de détection s'expriment comme des fonctions de corrélation du dipole atomique. Les signaux d'intensité $I(t)$ ou $I_\alpha(t)$ font intervenir la valeur du dipole à un seul instant t . Ils peuvent être mis sous la forme d'une moyenne à un temps $\langle A(t) \rangle$. Nous allons pouvoir les calculer à partir de l'équation pilote par un simple passage de la représentation de Heisenberg à celle de Schrödinger (§ 1-3.3). La situation semble plus difficile pour les corrélations temporelles et le spectre qui font intervenir des fonctions de corrélations à deux temps. Nous allons en fait pouvoir les déduire aussi de l'équation pilote en utilisant le théorème de regression quantique [Dh]. Ce théorème permet de relier l'évolution des moyennes à deux temps à l'équation pilote : si les valeurs moyennes à un temps $\langle A_i(t) \rangle$ obéissent à des équations d'évolution couplées :

$$\frac{d}{dt} \langle A_i(t) \rangle = \sum_j \alpha_{ij} \langle A_j(t) \rangle \quad (1-3.16)$$

alors les valeurs moyennes à deux temps $\langle A_i(t+\tau) B(t) \rangle$ obéissent pour $\tau > 0$ aux mêmes équations d'évolution

$$\frac{d}{d\tau} \langle A_i(t+\tau) B(t) \rangle = \sum_j \alpha_{ij} \langle A_j(t+\tau) B(t) \rangle \quad (1-3.17)$$

En énonçant ce résultat on néglige en fait la dynamique des corrélations à l'échelle du temps de corrélation de l'émission spontanée. Le théorème de régres-

sion quantique n'est donc applicable que parce que ce temps de corrélation est très court. Nous reviendrons sur ce problème dans le chapitre 1-5.

1-3.3 L'intensité de la fluorescence

On vient de montrer (eq. 1-3.7)

$$I(t) = K \zeta \langle D^+(t) D^-(t) \rangle_H \quad (1-3.18)$$

(le H signifie que cette expression est écrite dans le point de vue de Heisenberg). On peut réécrire cette même expression dans le point de vue de Schrodinger en fonction de la matrice densité $\sigma(t)$

$$I(t) = K \zeta \text{Tr } D^+ D^- \sigma(t) \quad (1-3.19)$$

Or

$$D^+ D^- = d^2 |e\rangle \langle g| g\rangle \langle e| = d^2 |e\rangle \langle e| \quad (1-3.20)$$

$$I(t) = K \zeta d^2 \pi_e(t) \quad (1-3.21)$$

avec :

$$\pi_e(t) = \sum_n \langle e, n | \sigma(t) | e, n \rangle \quad (1-3.22)$$

Ce résultat a une interprétation très claire : l'intensité de fluorescence est proportionnelle à la population totale $\pi_e(t)$ du niveau excité.

On vérifie ici que les signaux de fluorescence s'expriment en fonction de la matrice densité réduite $\rho(t)$ (introduite dans le § 1-2.4). En effet

$$\pi_e(t) = \langle + | \rho(t) | + \rangle \quad (1-3.23)$$

L'expression (1-3.21) permet de donner la signification du facteur ζ : Kd^2 est le taux d'émission spontanée Γ de l'atome dans son niveau excité (voir eq. 1-2.2) et $Kd^2 \pi_e(t)$ est donc le nombre de photons émis par l'atome (par unité de temps). $I(t)$ étant le nombre de photons détectés, ζ apparaît comme la probabilité de détection d'un photon émis par l'atome. Ce "taux de détection" est relié à plusieurs paramètres expérimentaux :

$$\zeta = (\text{facteur d'angle solide}) \times (\text{transmission des éventuels éléments optiques : hublots, lentilles....}) \times (\text{rendement quantique du photomultiplicateur}) \quad (1-3.24)$$

Il est généralement beaucoup plus petit que 1.

Variation de l'intensité stationnaire en fonction de δ et ω_1

Il est intéressant d'étudier la variation de l'intensité totale émise en régime stationnaire en fonction des deux paramètres δ et ω_1 qui caractérisent l'irradiation laser. Le nombre total de photons émis $\Gamma \pi_e(\infty)$ est par conservation de l'énergie égal au nombre total des photons absorbés. La variation de $\pi_e(\infty)$ avec le désaccord δ (à ω_1 fixé) fournit en quelque sorte le profil d'absorption du faisceau laser.

En résolvant l'équation pilote réduite (1-2.18) (ou les équations de Bloch, ce qui est équivalent) on obtient [voir par exemple Ab 24 ou Ah 1]

$$\pi_e(\infty) = \omega_1^2 / (\Gamma^2 + 2\omega_1^2 + 4\delta^2) \quad (1-3.25)$$

La variation de $\pi_e(\infty)$ avec δ est donnée par une lorentzienne (Fig 1-3.7)

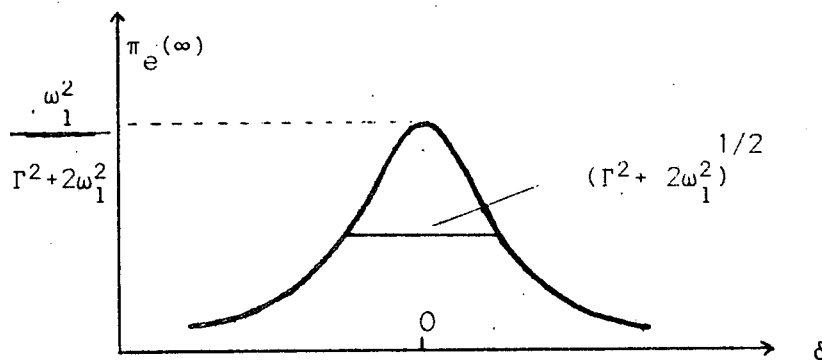


Figure 1-3.7 : Variation de $\pi_e(\infty)$ en fonction de $\delta = \omega_L - \omega_0$ pour ω_1 et Γ fixés. $\Gamma \pi_e(\infty)$ est le nombre total de photons émis (par unité de temps) ou le nombre de photons laser absorbés (pour un atome et par unité de temps).

A la limite perturbative ($\omega_1 \ll \Gamma$), on retrouve le résultat bien connu associé au diagramme de Feynman d'ordre 1. L'absorption du faisceau laser est linéaire (ω_1^2 est proportionnel à l'intensité laser) et elle peut être caractérisée par une section efficace d'absorption

$$\sigma_A(\delta) = \frac{3\lambda^2}{2\pi} \Gamma^2 / (\Gamma^2 + 4\delta^2) \quad (1-3.26)$$

(profil d'absorption lorentzien de largeur Γ)

Lorsque ω_1 augmente, apparaissent des phénomènes de saturation : la valeur maximale

$$\pi_e^{(\infty)}_{\max} = \omega_1^2 / (\Gamma^2 + 2\omega_1^2) \quad (1-3.27)$$

tend vers la valeur limite 1/2 (pour $\delta=0$ et $\omega_1 \gg \Gamma$ l'atome passe la moitié de son temps dans l'état excité) ; la largeur de la lorentzienne $(\Gamma^2 + 2\omega_1^2)^{1/2}$ augmente ; l'absorption du faisceau laser n'est plus linéaire (on ne peut plus définir $\sigma_A(\delta)$)

Evolution transitoire de l'intensité

On peut aussi étudier l'évolution transitoire de la fluorescence totale lorsque, par une technique appropriée (entrée brusque de l'atome dans le faisceau laser, "Stark switching", ...) on "branche" brusquement l'interaction atome laser.

L'intensité de fluorescence reproduit alors la variation transitoire de π_e c'est-à-dire la précession de Rabi amortie par émission spontanée. Nous noterons $\pi(e, \tau | g)$ la population de e à l'instant τ lorsque l'atome est dans l'état g à l'instant 0 et $J(\tau)$ l'intensité correspondante

$$J(\tau) = \Gamma \zeta \pi(e, \tau | g) \quad (1-3.28)$$

On peut calculer $\pi(e, \tau | g)$ en résolvant l'équation pilote réduite (1-2.18) (ou les équations de Bloch). Nous faisons ici le calcul dans le cas $\omega_1 \gg \Gamma$ où l'interprétation est plus simple grâce à l'approximation séculaire.

On peut exprimer $J(\tau)$ en fonction des populations et cohérences réduites

$$J(\tau) = J_{\text{pop}}(\tau) + J_{\text{coh}}(\tau) \quad (1-3.29)$$

avec $J_{\text{pop}}(\tau) = \Gamma \zeta (\cos^2 \theta \pi_1(\tau) + \sin^2 \theta \pi_2(\tau)) \quad (1-3.30)$

$$J_{\text{coh}}(\tau) = -\Gamma \zeta \sin \theta \cos \theta (\rho_{12}(\tau) + \rho_{21}(\tau)) \quad (1-3.31)$$

Le calcul de $J(\tau)$ se ramène alors au problème de l'évolution transitoire des populations et cohérences réduites que l'on a déjà résolu (§ 1-2.4) On obtient ainsi :

$$J_{\text{pop}}(\tau) = J_{\text{pop}}^{(\infty)} + (J_{\text{pop}}(0) - J_{\text{pop}}^{(\infty)}) \exp(-\tau/\tau_{\text{pop}}) \quad (1-3.32)$$

$$J_{\text{coh}}(\tau) = J_{\text{coh}}(0) \cos \Omega \tau \exp(-\tau/\tau_{\text{coh}}) \quad (1-3.33)$$

$$\text{avec } J_{\text{pop}}(\infty) = \Gamma \zeta \cos^2 \theta \sin^2 \theta / (\cos^4 \theta + \sin^4 \theta) \quad (1-3.34)$$

$$J_{\text{pop}}(0) = -J_{\text{coh}}(0) = 2\Gamma \zeta \cos^2 \theta \sin^2 \theta \quad (1-5.35)$$

Les temps d'amortissement de J_{pop} et J_{coh} sont respectivement les temps d'amortissement τ_{pop} et τ_{coh} des populations et des cohérences réduites. La contribution des cohérences au régime stationnaire est nulle et la contribution des populations $J_{\text{pop}}(\infty)$ est donc identique à l'intensité stationnaire calculée précédemment (eq. 1-3.25 à la limite $\omega_1 \gg \Gamma$ puisqu'on a utilisé ici l'approximation séculaire). L'intensité initiale $J(0) (= J_{\text{pop}}(0) + J_{\text{coh}}(0))$ est nulle puisque l'atome est initialement dans son état fondamental.

L'allure de $J(\tau)$ est représentée sur la figure 1-3.8

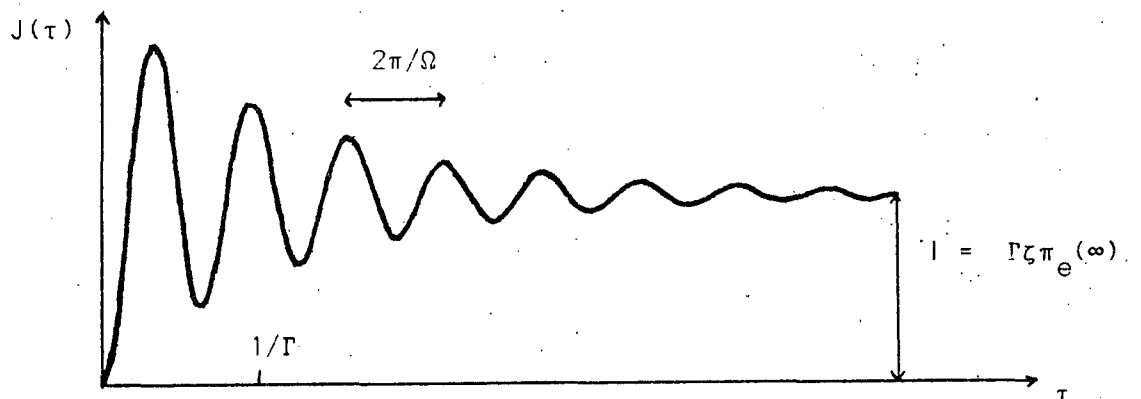


Figure 1-3.8 : Evolution transitoire de l'intensité $J(\tau)$ émise par un atome partant initialement de l'état g .

L'expression de $J(\tau)$ est particulièrement simple dans le cas d'une excitation résonnante ($\delta = 0$)

$$J(\tau) = \frac{\Gamma\zeta}{2} (1 - \cos \omega_1 \tau \exp(-3\Gamma\tau/4)) \quad (1-3.36)$$

La contribution des populations ne dépend pas alors de τ (les populations stationnaires sont égales aux populations initiales $\pi_i(\infty) = \pi_i(0) = 1/2$ et on a $J_{\text{pop}}(0) = J_{\text{pop}}(\infty)$ dans l'expression 1-3.32).

Cette discussion montre que la modulation de la fluorescence totale associée à la précéssion de Rabi peut être considérée comme un signal de battements quantiques entre niveaux habillés. Un tel battement quantique est observé parce que l'état initial est une superposition cohérente d'états propres de l'atome habillé.

1-3.4 Le spectre de fluorescence

On peut réécrire l'expression (1-3.11) du spectre $S(\omega)$ sous la forme

$$S(\omega) = \frac{K \zeta}{\pi} \operatorname{Re} \int_0^{\infty} \langle D^+(t+\tau) L^-(t) \rangle \exp(-i\omega\tau) d\tau \quad (1-3.37)$$

Dans l'équation (1-3.11) figuraient les contributions des valeurs positives et négatives de τ . Pour écrire (1-3.37) on a exprimé la contribution des valeurs négatives en fonction de la contribution des valeurs positives en utilisant les relations :

$$\langle D^+(t-\tau) D^-(t) \rangle = \langle D^+(t) D^-(t-\tau) \rangle^* = \langle D^+(t+\tau) D^-(t) \rangle^* \quad (1-3.38)$$

(première égalité parce que D^+ et D^- sont deux opérateurs adjoints ; deuxième égalité parce que l'on étudie le spectre dans le régime stationnaire)

D'après le théorème de régréssion quantique (voir § 1-3.2), la fonction de corrélation $\langle D^+(t+\tau) D^-(t) \rangle$ évolue en fonction de τ comme $\langle D^+(t+\tau) \rangle$ (dans l'expression (1-3.37) du spectre, τ est en effet toujours positif). Il nous faut donc étudier l'évolution temporelle de $\langle D^+(t+\tau) \rangle$

Décomposition en trois raies

On peut écrire D^+ sous la forme

$$D^+ = \sum_{i,j,n} |i,n\rangle \langle i,n| D^+ |j,n-1\rangle \langle j,n-1| \quad (1-3.39)$$

On obtient ainsi D^+ comme somme de trois composantes D_α^+ , chacune évoluant à la fréquence propre $\omega_L + \alpha\Omega$ ($\alpha = 0, \pm 1$) de l'atome habillé

$$D^+ = \sum_{\alpha=0, \pm 1} D_\alpha^+ \quad (1-3.40)$$

($\alpha=1$ correspond dans (1-3.39) à $i=1$ $j=2$)

$\alpha = -1$ " " " $i=2$ $j=1$

$\alpha = 0$ " " " $i=j$)

En reportant la décomposition (1-3.40) de D^+ dans l'expression (1-3.37) du spectre, on obtient

$$S(\omega) = \sum_{\alpha} S_{\alpha}(\omega) \quad (1-3.41)$$

$$S_{\alpha}(\omega) = \frac{K \zeta}{\pi} \operatorname{Re} \int_0^{\infty} \langle D_{\alpha}^{+}(t+\tau) D^{-}(t) \rangle \exp(-i\omega\tau) d\tau \quad (1-3.42)$$

D'après le théorème de régression quantique, $\langle D_{\alpha}^{+}(t+\tau) D^{-}(t) \rangle$ évolue à la fréquence $\omega_L + \alpha\Omega$ comme $\langle D_{\alpha}^{+}(t+\tau) \rangle$ et $S_{\alpha}(\omega)$ est donc l'expression de la raie de fréquence $\omega_L + \alpha\Omega$.

Poids des raies

Le poids $I(\omega_L + \alpha\Omega)$ est par définition l'intégrale de la raie de fréquence $\omega_L + \alpha\Omega$

$$I(\omega_L + \alpha\Omega) = \int d\omega S_{\alpha}(\omega) \quad (1-3.43)$$

$$= K \zeta \langle D_{\alpha}^{+}(t) D^{-}(t) \rangle \quad (1-3.44)$$

L'intégrale sur ω de (1-3.42) fait apparaître en fait la valeur moyenne $\langle D_{\alpha}^{+} D^{-} \rangle$ mais on montre aisément que les moyennes $\langle D_{\alpha}^{+} D_{\beta}^{-} \rangle$ sont pour $\beta \neq \alpha$ proportionnelles à des cohérences réduites et s'annulent en régime stationnaire. Par contre, les moyennes $\langle D_{\alpha}^{+} D_{\alpha}^{-} \rangle$ sont proportionnelles à des populations et les poids des raies s'expriment donc en fonction des populations stationnaires. On démontre :

$$I(\omega_L + \Omega) = \zeta \Gamma_{21} \pi_1(\infty) \quad (1-3.45)$$

$$I(\omega_L - \Omega) = \zeta \Gamma_{12} \pi_2(\infty) \quad (1-3.46)$$

$$I(\omega_L) = \zeta (\Gamma_{11} \pi_1(\infty) + \Gamma_{22} \pi_2(\infty)) \quad (1-3.47)$$

Ces équations ont une interprétation très simple (Fig. 1-3.9) :

le nombre de photons émis sur une transition $|i, n\rangle \rightarrow |j, n-1\rangle$ est le produit de la population $\pi_{i,n}$ du niveau supérieur par le taux de transition Γ_{ji} . La sommation sur n fait apparaître le produit $\Gamma_{ji} \pi_i$ ou π_i est la population réduite.

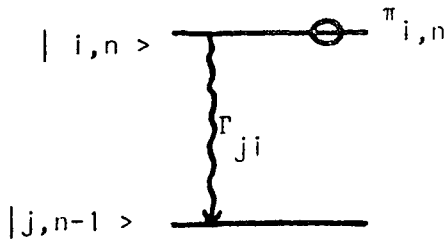


Figure I-3.9 : Interprétation de l'intensité émise

sur une raie en termes de populations et de taux de transition.

Les populations réduites stationnaires sont déterminées par la condition (I-2.25) du bilan détaillé :

$$\Gamma_{21} \pi_1(\infty) = \Gamma_{12} \pi_2(\infty) \quad (I-3.48)$$

qui exprime l'équilibre entre le nombre total de transitions à la fréquence $\omega_L + \Omega$ et le nombre total de transitions à la fréquence $\omega_L - \Omega$ autrement dit l'égalité

$$I(\omega_L + \Omega) = I(\omega_L - \Omega) \quad (I-3.49)$$

Remarques :

(i) Il y a identité entre $I(\omega_L + \alpha\Omega)$ (eq. I-3.44) et la quantité I_α définie au § I-3.1 (eq. I-3.14). Ceci est bien normal puisque I_α est par définition l'intensité mesurée derrière un filtre sélectionnant la raie de fréquence $\omega_L + \alpha\Omega$. Toutefois $I(\omega_L + \alpha\Omega)$ est défini à partir du spectre de fluorescence et est donc limité au régime stationnaire (on utilise un filtre de largeur $\Delta\omega \ll \Gamma$ ce qui interdit l'étude du régime transitoire) alors que l'on peut étudier l'évolution transitoire de $I_\alpha(t)$. Par exemple $I_1(t)$ est le produit de la population transitoire $\pi_1(t)$ par le taux de transition Γ_{21}

$$I_1(t) = \zeta \Gamma_{21} \pi_1(t) \quad (I-3.50)$$

(même interprétation que I-3.45). A cause de l'égalité entre les taux Γ_{11} et Γ_{22} (voir eq. I-2.15) on a :

$$\begin{aligned} I_0(t) &= \zeta(\Gamma_{11} \pi_1(t) + \Gamma_{22} \pi_2(t)) = \zeta \Gamma_{11} (\pi_1(t) + \pi_2(t)) \quad (I-3.51) \\ &= \zeta \Gamma_{11} \end{aligned}$$

Si le filtre sélectionne la raie centrale, l'intensité ne présente pas de régime transitoire.

ii) Nous avons discuté au § I-3.3 l'étude de l'évolution transitoire de l'intensité $J(\tau)$ associée à la précession de Rabi de l'atome étant initialement dans g .

On peut écrire :

$$J(\tau) = K \zeta \langle D^+ D^- \rangle = K \zeta \sum_{\alpha} \sum_{\beta} \langle D_{\alpha}^+ D_{\beta}^- \rangle \quad (I-3.52)$$

Les "termes carrés" ($\beta=\alpha$) qui sont les quantités I_{α} correspondent exactement à la contribution des populations $J_{pop}(\tau)$ et les "termes rectangles" ($\beta \neq \alpha$) à celle des cohérences $J_{coh}(\tau)$.

Autrement dit, en resonnant seulement les intensités I_{α} correspondant à chaque raie, on n'obtient pas l'intensité totale.

Forme des raies latérales

Pour trouver la forme précise de la raie $S_{\alpha}(\omega)$, il faut étudier la relaxation de $\langle D_{\alpha}^+ (t+\tau) \rangle$. Nous nous intéressons d'abord à la raie de fréquence $\omega_L + \Omega$

$$\langle D_1^+ (t) \rangle = \text{Tr } D_1^+ \sigma(t) \quad (I-3.53)$$

$$= \langle 1, n | D^+ | 2, n-1 \rangle \sum_n \langle 2, n-1 | \sigma(t) | 1, n \rangle \quad (I-3.54)$$

(l'élément de matrice de D^+ ne dépend pas de n). Les équations d'évolution des "cohérences optiques" $\langle 2, n-1 | \sigma(t) | 1, n \rangle$ se déduisent de l'équation pilote (I-2.1)

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \langle 2, n-1 | \sigma(t) | 1, n \rangle &= (i(\omega_L + \Omega) - (\Gamma_1 + \Gamma_2)/2) \langle 2, n-1 | \sigma(t) | 1, n \rangle \\ &+ K d_{11} d_{22} \langle 2, n | \sigma(t) | 1, n+1 \rangle \end{aligned} \quad (I-3.55)$$

La première ligne représente l'évolution libre et l'amortissement par émission spontanée de la cohérence optique et la deuxième ligne représente un transfert de cohérence optique (Fig I-3.10)

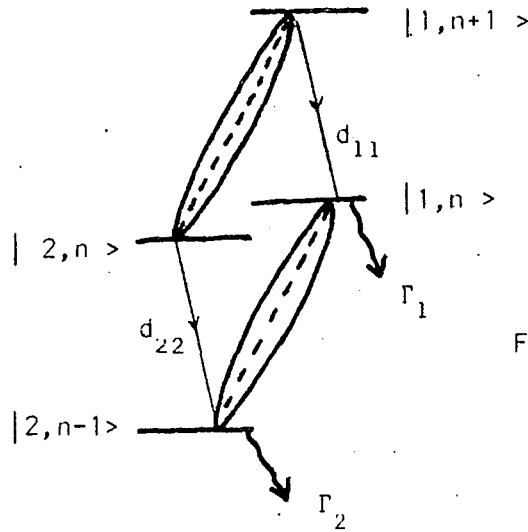


Figure 1-3.10: Evolution de la cohérence optique $\langle 2, n-1 | \sigma(t) | 1, n \rangle$

On retrouve que les équations d'évolution des cohérences optiques $\langle 2, n-1 | \sigma(t) | 1, n \rangle$ sont exactement identiques (au terme d'évolution libre près) aux équations d'évolution des cohérences basse fréquence $\langle 2, n | \sigma(t) | 1, n \rangle$ (voir § 1-2.5). En conséquence, le temps d'amortissement de la "cohérence optique réduite" $\langle 2, n-1 | \sigma(t) | 1, n \rangle$ (et donc de $\langle D_1^+(t) \rangle$ d'après 1-3-54) est égal au temps d'amortissement τ_{coh} des cohérences basse fréquence réduites (défini par l'équation 1-2.31)

$$\frac{d}{dt} \langle D_1^+(t) \rangle = (i(\omega_L + \Omega) - \tau_{\text{coh}}^{-1}) \langle D_1^+(t) \rangle \quad (1-3.56)$$

On en déduit d'après le théorème de régression quantique :

$$\frac{d}{d\tau} \langle D_1^+(t+\tau) D^- (t) \rangle = (i(\omega_L + \Omega) - \tau_{\text{coh}}^{-1}) \langle D_1^+(t+\tau) D^- (t) \rangle \quad (1-3.57)$$

$$\langle D_1^+(t+\tau) D^- (t) \rangle = \langle D_1^+(t) D^- (t) \rangle \exp(i(\omega_L + \Omega)\tau) \exp(-\tau/\tau_{\text{coh}}) \quad (1-3.58)$$

(pour $\tau > 0$). On obtient finalement la forme de la raie $S_1(\omega)$ en reportant (1-3.58) dans (1-3.42) :

$$S_1(\omega) = \frac{K\zeta}{\pi} \langle D_1^+ D^- \rangle \tau_{\text{coh}}^{-1} / [(\omega - (\omega_L + \Omega))^2 + \tau_{\text{coh}}^{-2}] \quad (1-3.59)$$

La raie de fréquence $\omega_L + \Omega$ est donc une lorentzienne. On retrouve l'expression de son poids $1(\omega_L + \Omega)$ que l'on a déjà discutée. La largeur totale à mi-hauteur de la lorentzienne est

$$L(\omega_L + \Omega) = 2 \tau_{\text{coh}}^{-1} \quad (1-3.60)$$

On montre de la même façon que l'autre raie latérale centrée en $\omega_L - \Omega$ est une lorentzienne de largeur

$$L(\omega_L - \Omega) = L(\omega_L + \Omega) \quad (1-3.61)$$

(on a déjà montré l'égalité des poids des deux raies latérales ; éq. 1-3.49).

Forme de la raie centrale

La forme de la raie centrale est donnée par la relaxation de

$$\langle D_0^+ \rangle(t) = d_{11} \sum_n (\langle 1, n-1 | \sigma(t) | 1, n \rangle - \langle 2, n-1 | \sigma(t) | 2, n \rangle) \quad (1-3.62)$$

On a utilisé :

$$\langle 1, n | D^+ | 1, n-1 \rangle = - \langle 2, n | D^+ | 2, n-1 \rangle = d_{11} \quad (1-3.63)$$

Il faut donc étudier l'évolution des deux "cohérences optiques réduites" $\sum_n \langle i, n-1 | \sigma(t) | i, n \rangle$ ($i=1,2$) qui sont couplées par la relaxation (l'approximation séculaire ne permet pas de négliger ce couplage puisque ces deux cohérences évoluent à la même fréquence ω_L). On peut toutefois obtenir les caractéristiques de la raie centrale avec des arguments simples.

On remarque d'abord que les "cohérences optiques réduites" $\sum_n \langle i, n-1 | \sigma(t) | i, n \rangle$ obéissent aux mêmes équations d'évolution que les populations au terme d'évolution près, et que plus précisément

$$\sum_n \langle i, n-1 | \sigma(t) | i, n \rangle = \pi_i(t) \exp(i\omega_L t) \quad (1-3.64)$$

(voir la remarque du § 1-2.5 : on a supposé pour obtenir ce résultat que l'état du champ était un état cohérent)

On déduit alors de (1-3.62) et (1-3.64) que :

$$\langle D_0^+ \rangle(t) = d_{11} (\pi_1(t) - \pi_2(t)) \exp(i\omega_L t) \quad (1-3.65)$$

Après un régime transitoire amorti sur un temps τ_{pop} , les populations atteignent leur régime stationnaire et on a alors :

$$\langle D_0^+(t) \rangle = d_{11} (\pi_1(\omega) - \pi_2(\omega)) \exp(i\omega_L t) \quad (1-3.66)$$

Il peut paraître surprenant de trouver une cohérence telle que $\langle D_0^+ \rangle$ non nulle dans le régime stationnaire. Il est en fait bien connu que l'excitation par une onde monochromatique met le dipole atomique en vibration forcée [Ab 23]. C'est cette oscillation forcée que décrit l'équation (1-3.66).

Cette oscillation forcée de la valeur moyenne du dipole atomique donne naissance à la composante élastique du spectre de fluorescence dont on peut obtenir l'expression de la façon suivante : on sépare tout d'abord dans $D^+(t)$, la valeur moyenne $\langle D^+(t) \rangle$ et l'écart à la valeur moyenne $\delta D^+(t)$:

$$D^+(t) = \langle D^+(t) \rangle + \delta D^+(t) \quad (1-3.67)$$

$$\text{avec} \quad \langle \delta D^+(t) \rangle = 0 \quad (1-3.68)$$

On fait ensuite apparaître dans la fonction de corrélation $\langle D^+(t+\tau) D^-(t) \rangle$ qui intervient dans l'expression du spectre, la contribution de la valeur moyenne du dipole et celle de l'écart à la valeur moyenne :

$$\langle D^+(t+\tau) D^-(t) \rangle = \langle D^+(t+\tau) \rangle \langle D^-(t) \rangle + \langle \delta D^+(t+\tau) \delta D^-(t) \rangle \quad (1-3.69)$$

(les "termes rectangle" sont nuls d'après 1-3.68). Le premier terme correspond à la partie élastique $S_{el}(\omega)$ du spectre :

$$S_{el}(\omega) = \frac{K\zeta}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \langle D^+(t+\tau) \rangle \langle D^-(t) \rangle \exp(-i\omega \tau) d\tau \quad (1-3.70)$$

En reportant dans (1-3.70) l'expression (1-3.66) de $\langle D^+(t) \rangle$ dans le régime stationnaire ($\langle D^+ \rangle$ est identique à $\langle D_0^+ \rangle$ dans le régime stationnaire puisque $\langle D_{\pm 1}^+ \rangle = 0$), on obtient finalement

$$S_{el}(\omega) = K\zeta |\langle D_0^+(t) \rangle|^2 \delta(\omega - \omega_L) \quad (1-3.71)$$

Le poids de la raie élastique est donc :

$$I_{el} = K \zeta \left| \langle D_0^+ \rangle \right|^2 = \zeta \Gamma_{11} (\pi_1(\infty) - \pi_2(\infty))^2 \quad (1-3.72)$$

On en déduit par différence le poids de la composante centrale inélastique

$$I_{inel}(\omega_L) = I(\omega_L) - I_{el} \quad (1-3.73)$$

$$= \zeta \Gamma_{11} 4\pi_1(\infty) \pi_2(\infty) \quad (1-3.74)$$

On vérifie en effet qu'en ajoutant (1-3.74) et (1-3.72), on retrouve le poids total $I(\omega_L)$ de la raie centrale ($= \zeta \Gamma_{11}$ eq. 1-3.51) puisque

$$(\pi_1 - \pi_2)^2 + 4\pi_1\pi_2 = (\pi_1 + \pi_2)^2 = 1 \quad (1-3.75)$$

Enfin, la largeur $L_{inel}(\omega_L)$ de la raie centrale inélastique est reliée au temps d'amortissement τ_{pop} de $\langle D_0^+(t) \rangle$

$$L_{inel}(\omega_L) = 2 \tau_{pop}^{-1} \quad (1-3.76)$$

de la même façon que la largeur des raies latérales était liée au temps d'amortissement τ_{coh} de $\langle D_{\pm 1}^+(t) \rangle$ (eq. 1-3.60)

Récapitulation des caractéristiques du spectre

Tous les résultats que nous avons obtenus sont récapitulés dans les formules suivantes :

$$I(\omega_L \pm \Omega) = \Gamma \cos^4 \theta \sin^4 \theta / (\cos^4 \theta + \sin^4 \theta) \quad (1-3.77)$$

$$= \Gamma \omega_1^4 / (8(\omega_1^2 + \delta^2)(\omega_1^2 + 2\delta^2))$$

$$I_{el} = \Gamma \cos^2 \theta \sin^2 \theta (\cos^4 \theta - \sin^4 \theta)^2 / (\cos^4 \theta + \sin^4 \theta)^2 \quad (1-3.78)$$

$$= \Gamma \omega_1^2 \delta^2 / (\omega_1^2 + 2\delta^2)^2$$

$$\begin{aligned} L_{inel}(\omega_L) &= 4 \Gamma \cos^6 \theta \sin^6 \theta / (\cos^4 \theta + \sin^4 \theta)^2 \\ &= \Gamma \omega_1^6 / (4(\omega_1^2 + \delta^2)(\omega_1^2 + 2\delta^2)^2) \end{aligned} \quad (1-3.79)$$

$$\begin{aligned} L(\omega_L \pm \Omega) &= \Gamma (1 + 2\cos^2 \theta \sin^2 \theta) \\ &= \Gamma (3\omega_1^2 + 2\delta^2) / (2(\omega_1^2 + \delta^2)) \end{aligned} \quad (1-3.80)$$

$$\begin{aligned} L_{inel}(\omega_L) &= 2\Gamma (\cos^4 \theta + \sin^4 \theta) \\ &= \Gamma (\omega_1^2 + 2\delta^2) / (\omega_1^2 + \delta^2) \end{aligned} \quad (1-3.81)$$

On peut insister sur le fait que le spectre est symétrique : poids et largeurs sont les mêmes pour les deux raies latérales.

1-3.5 Les corrélations de photons

Interprétation de l'effet de dégroupement

Nous avons obtenu au § 1-3.2 l'expression du signal de corrélations de photons $C(t+\tau, t)$. Cette expression (1-3.7) est écrite dans la représentation de Heisenberg. On peut la réécrire en fonction de la matrice densité $\sigma(t)$ en représentation de Schroedinger et de l'opérateur d'évolution U (en utilisant l'invariance d'une trace par permutation circulaire)

$$C(t+\tau, t) = K^2 \zeta^2 \text{Tr} [D^- U(t+\tau, t) D^- \sigma(t) D^+ U^+(t+\tau, t) D^+] \quad (1-3.82)$$

Cette expression permet de comprendre très simplement l'effet de dégroupement et l'allure de la fonction de corrélation.

On peut en effet écrire :

$$D^- \sigma(t) D^+ = (\text{Tr} D^- \sigma(t) D^+) \sum(t) \quad (1-3.83)$$

où $\sum(t)$ est une matrice densité normée ($\text{Tr} \sum(t) = 1$). La fonction de corrélation (1-3.82) s'écrit alors :

$$C(t+\tau, t) = (K \zeta \text{Tr} D^- \sigma(t) D^+) \cdot (K \zeta \text{Tr} D^- \sum(t+\tau) D^+) \quad (1-3.84)$$

avec :

$$\sum(t+\tau) = U(t+\tau, t) \sum(t) U^+(t+\tau, t) \quad (1-3.85)$$

L'interprétation de ces résultats est la suivante :

La première parenthèse dans (1-3.84) est simplement la probabilité $I(t)$ de détecter un photon à l'instant t (voir § 1-3.3). L'émission de ce photon "projette" le système de l'état $\sigma(t)$ dans l'état $\sum(t)$. Le système évolue alors entre t et $t+\tau$: $\sum(t)$ devient $\sum(t+\tau)$ (eq. 1-3.85) et la probabilité de détecter un autre photon en $t+\tau$ est donnée par la seconde parenthèse de (1-3.84).

On peut réécrire (I-3.83) en utilisant :

$$D^- \sigma(t) D^+ = d^2 |g\rangle \langle e| \sigma(t) |e\rangle \langle g| \quad (I-3.86)$$

et montrer ainsi que l'état $\sum(t)$ est restreint à l'état fondamental g de l'atome. Un tel résultat correspond bien à l'image de l'atome subissant un "saut quantique" de l'état excité à l'état fondamental quand il émet un photon. On explique ainsi l'effet de dégroupement : après l'émission du premier photon, l'atome est dans l'état fondamental et il ne peut réémettre un second photon immédiatement. Ceci montre aussi que la seconde parenthèse de (I-3.84) est identique à l'intensité $J(\tau)$ émise par l'atome dans son régime transitoire lorsque l'état initial de l'atome est g (voir § I-3.3), ce qui permet d'écrire :

$$C(t+\tau, t) = I(t) J(\tau) \quad (I-3.87)$$

$$= \Gamma \zeta \pi_e(t) \cdot \Gamma \zeta \pi(e, \tau/g) \quad (I-3.88)$$

Remarque :

La discussion précédente pourrait laisser croire que l'on peut calculer la fonction de corrélation $C(t+\tau, t)$ sans utiliser le théorème de régression quantique. On l'a en fait utilisé implicitement. En effet dans l'équation (I-3.82), $\sigma(t)$ est en toute rigueur la matrice densité du système total $\sigma_{ALR}(t)$ et on a en fait utilisé deux approximations [Ad 6] :

(i) On a négligé les corrélations entre l'atome habillé et les modes initialement vides en supposant (implicitement)

$$\sigma_{ALR}(t) = \sigma_{AL}(t) \otimes \sigma_R(t) \quad (I-3.89)$$

(ii) On a considéré de plus que l'état du rayonnement $\sigma_R(t)$ reste le vide $\sigma_R(0) = |0\rangle \langle 0|$: la transitoire de Rabi entre t et $t+\tau$ est calculée sans tenir compte de l'effet des photons émis spontanément avant t . Utiliser ces deux approximations est équivalent à utiliser le théorème de régression quantique : ceci est possible parce que le couplage entre l'atome et les modes vides a un temps de corrélation extrêmement court.

Signal mesuré par une technique START-STOP

$C(t+\tau, t)$ est la probabilité que l'on détecte un photon à l'instant t puis un autre à l'instant $t+\tau$. Comme nous l'avons déjà remarqué (§ 1-3.1), on mesure par une technique START-STOP non pas $C(t+\tau, t)$ mais $C'(t+\tau, t)$: probabilité de détecter un photon à l'instant t puis le suivant à l'instant $t+\tau$. Autrement dit un événement tel que "détection d'un premier photon à t , d'un second à $t+\tau'$ ($\tau' < \tau$), d'un troisième à $t+\tau''$ " contribue à $C(t+\tau, t)$ mais pas à $C'(t+\tau, t)$.

L'équation (1-3.87) devient donc

$$C'(t+\tau, t) = I(t) K(\tau) \quad (1-3.90)$$

où $K(\tau)$ est la probabilité que le premier photon soit détecté à l'instant τ lorsque l'atome est initialement dans l'état fondamental.

Si l'on détecte tous les photons émis ($\zeta=1$), l'interprétation de $K(\tau)$ est extrêmement simple :

$$K(\tau) = \Gamma \pi(e, n, \tau/g, n+1) \quad (\text{pour } \zeta = 1) \quad (1-3.91)$$

Si l'atome habillé est initialement dans l'état $|g, n+1\rangle$, la probabilité $K(\tau)$ d'émission du premier photon est proportionnelle à la population de $|e, n\rangle$ alors que la probabilité $J(\tau)$ d'émission d'un photon quelconque (pas nécessairement le premier) est proportionnelle à la somme des populations de tous les niveaux $|e, n'\rangle$ avec $n' \leq n$

$$J(\tau) = \Gamma \sum_{n' \leq n} \pi(e, n', \tau |g, n+1\rangle) \quad (\text{pour } \zeta = 1) \quad (1-3.92)$$

La différence entre K et J apparaît alors très importante : après un temps de l'ordre de $1/\Gamma$, $K(\tau)$ tend vers 0 alors que $J(\tau)$ tend vers une constante I (l'intensité stationnaire) (Fig 1-3.11a)

Par contre, lorsque le taux de détection est faible ($\zeta \ll 1$), ce qui correspond aux conditions expérimentales habituelles, la différence entre K et J est beaucoup moins importante. En effet, la probabilité qu'un photon ait été détecté entre 0 et τ est au plus $\Gamma \zeta \tau$ et la différence entre K et J n'apparaît donc qu'après un temps $(\Gamma \zeta)^{-1}$ beaucoup plus long que la durée Γ^{-1} du régime transitoire que l'on étudie en général (Fig 1-3.11b)

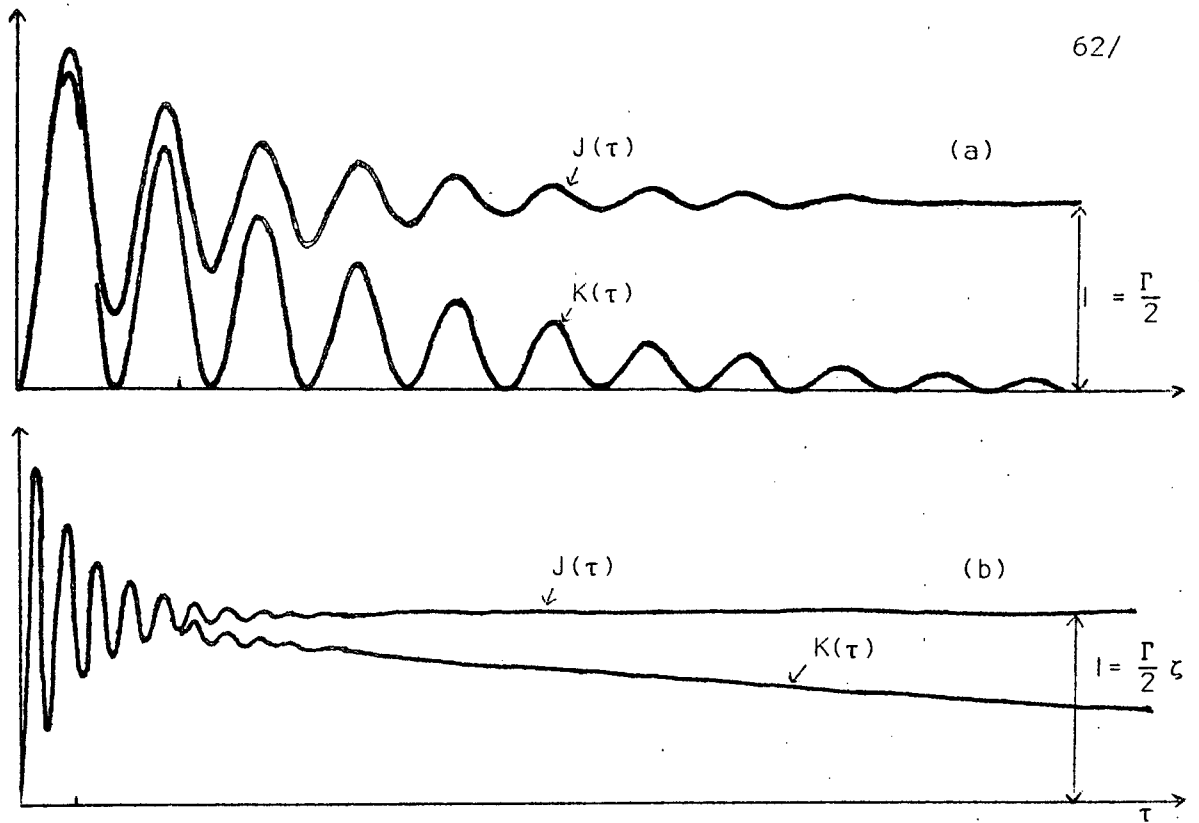


Figure 1-3.11 : Différence entre $J(\tau)$ et $K(\tau)$ pour

(a) $\zeta = 1$ ($\omega_1 = 10\Gamma$ sur la figure)

(b) $\zeta < 1$ ($\zeta = 1/15$ sur la figure)

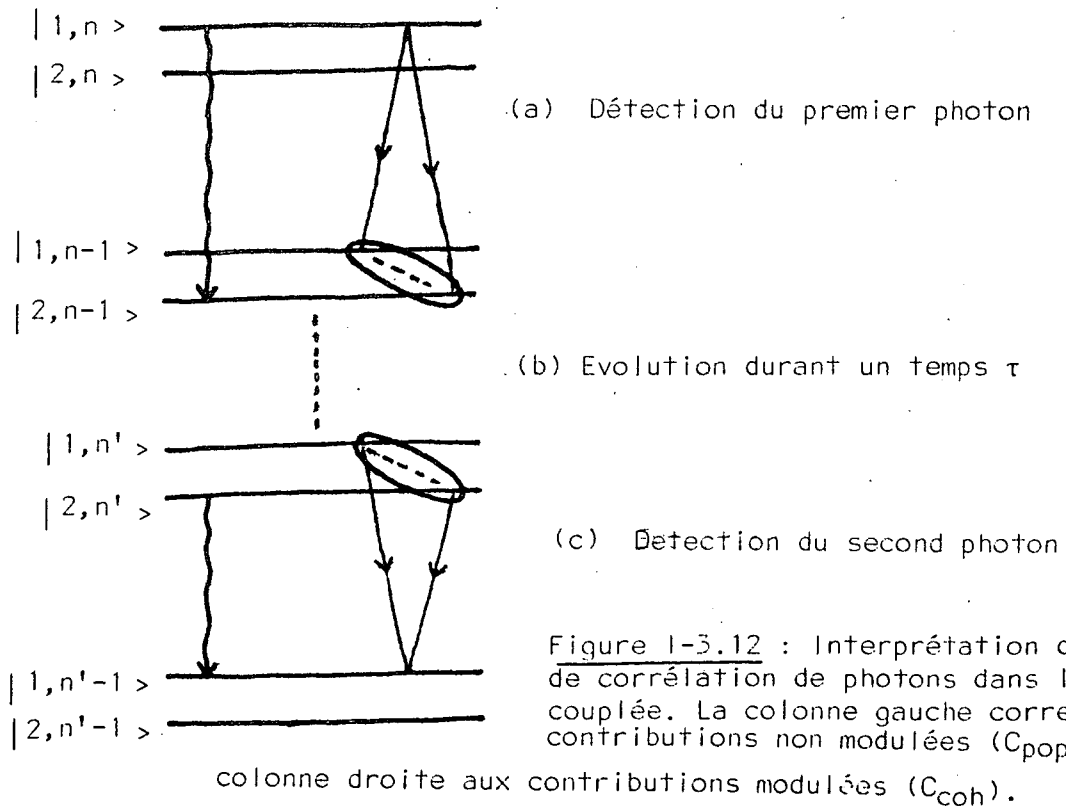


Figure 1-3.12 : Interprétation du signal de corrélation de photons dans la base couplée. La colonne gauche correspond aux contributions non modulées (C_{pop}) et la colonne droite aux contributions modulées (C_{coh}).

Le problème du calcul de $K(\tau)$ lorsqu'on connaît $J(\tau)$ est abordé dans l'appendice A1.

Expression du signal de corrélation dans la base couplée

Le signal de corrélation peut être exprimé dans la base des états couplés. On obtient :

$$C(t+\tau, t) = K^2 \zeta^2 \sum d_{ji} d_{lk} d_{lq} d_{rs} \rho(qk, \tau/rj) \rho_{si}(t) \quad (1-3.93)$$

où les $d_{ji} \dots$ sont les éléments de matrice du dipole (voir § 1-1.4), $\rho_{si}(t)$ les éléments de matrice de $\rho(t)$ et $\rho(qk, \tau/rj)$ la valeur de ρ_{qk} à l'instant τ si l'on suppose que le seul élément de matrice de ρ non nul initialement est $\rho_{rj}(0)$ (égal à 1) (la sommation porte sur les sept indices i, j, k, l, q, r et s).

Cette expression paraît beaucoup plus compliquée que l'expression équivalente dans la base découplée (eq. 1-3.88). Mais elle est intéressante parce qu'elle va nous permettre d'aborder simplement l'étude des corrélations entre photons filtrés (c'est d'ailleurs cette expression qui nous a suggéré une telle étude).

Nous pouvons d'abord simplifier l'équation 1-3.88 en utilisant l'approximation séculaire. En effet, dans le régime stationnaire, seules les populations sont non nulles:

$$\rho_{si}(t) = \delta_{si} \pi_i(\infty) \quad (1-3.94)$$

De plus, les seuls $\rho(qk, \tau/rj)$ non nuls sont ceux qui correspondent à deux éléments ρ_{qk} et ρ_{rj} évoluant à la même fréquence. Ces éléments non nuls sont donc, d'une part les $\rho(rj, \tau/rj)$ avec $r \neq j$ (amortissement d'une cohérence correspondant à $q=r$ et $k=j$ dans 1-3.93), d'autre part les $\pi(k, \tau/j)$ (évolution des populations correspondant à $q=k$ et $r=j$ dans 1-3.93). On trouve ainsi :

$$C(t+\tau, t) = C_{\text{pop}}(t+\tau, t) + C_{\text{coh}}(t+\tau, t) \quad (1-3.95)$$

$$C_{\text{pop}}(t+\tau, t) = \zeta^2 \sum [\Gamma_{lk} \pi(k, \tau/j)] [\Gamma_{ji} \pi_i(\infty)] \quad (1-3.96)$$

$$C_{\text{coh}}(t+\tau, t) = K^2 \zeta^2 \sum [d_{lj} d_{lr} \rho(rj, \tau/rj)] [d_{ji} d_{ri} \pi_i(\infty)] \quad (1-3.97)$$

(la sommation porte sur tous les indices avec la restriction $r \neq j$ dans 1-3.96)

Chaque contribution apparaît liée à une suite de trois processus (Fig 1-3.12). Le premier processus (1-3.12a) est la détection du premier photon : l'atome habillé partant de l'un des deux états de la multiplicité $\mathcal{E}_n$ est "projeté" dans une superposition linéaire des deux états de $\mathcal{E}_{n-1}$ ($|g, n\rangle$ est une superposition linéaire de $|1, n-1\rangle$ et $|2, n-1\rangle$). L'état après la "projection" est donc décrit par une matrice densité ayant des éléments diagonaux et des éléments non diagonaux (respectivement colonnes gauche et droite de la Fig. 1-3.12a). Le deuxième processus (Fig. 1-3.12b) est l'évolution de l'atome habillé pendant un temps τ : redistribution des populations π_1 et π_2 (colonne gauche) et oscillation amortie des cohérences (colonne droite). Il y a enfin la détection du second photon (Fig 1-3.12c).

Le signal contient donc une partie modulée $C_{\text{coh}}(t+\tau, t)$ (associée à la colonne droite de la Fig. 1-3.12). Cette discussion montre bien que la modulation de $C(t+\tau, t)$ est due à la "cohérence" entre les deux niveaux habillés $|1, n-1\rangle$ et $|2, n-1\rangle$ "créée" par le premier processus de détection. Ce processus joue un rôle analogue à celui de l'excitation percutielle qui, dans une expérience de battements quantiques, prépare l'atome dans une superposition cohérente de sous niveaux de l'état excité. Le phénomène discuté ici étant lié à la cascade radiative de l'atome habillé, il est en fait plus judicieux de le comparer avec les "corrélations perturbées" apparaissant dans les cascades radiatives atomiques ou nucléaires [Dd]

Les signaux de corrélation entre photons filtrés

Si l'on interpose devant les deux détecteurs des filtres sélectionnant chacun l'une des raies du spectre (voir discussion § 1-3.1), on obtient un signal de corrélation $C_{\beta\alpha}(t+\tau, t)$ entre photons filtrés : $C_{\beta\alpha}(t+\tau, t)$ est la probabilité que l'on détecte un photon émis à l'instant t dans la raie $\omega_L + \alpha\Omega$, puis un autre émis à l'instant $t+\tau$ dans la raie $\omega_L + \beta\Omega$. Pour des raisons de commodité, nous emploierons l'une ou l'autre des deux notations équivalentes:

$$C_{\beta\alpha}(t+\tau, t) = C(\omega_L + \beta\Omega, t+\tau / \omega_L + \alpha\Omega, t) \quad (1-3.98)$$

L'expression du signal de corrélation dans la base couplée permet immédiatement de calculer ce signal. Il suffit en effet d'éliminer parmi les équations (1-3.96)

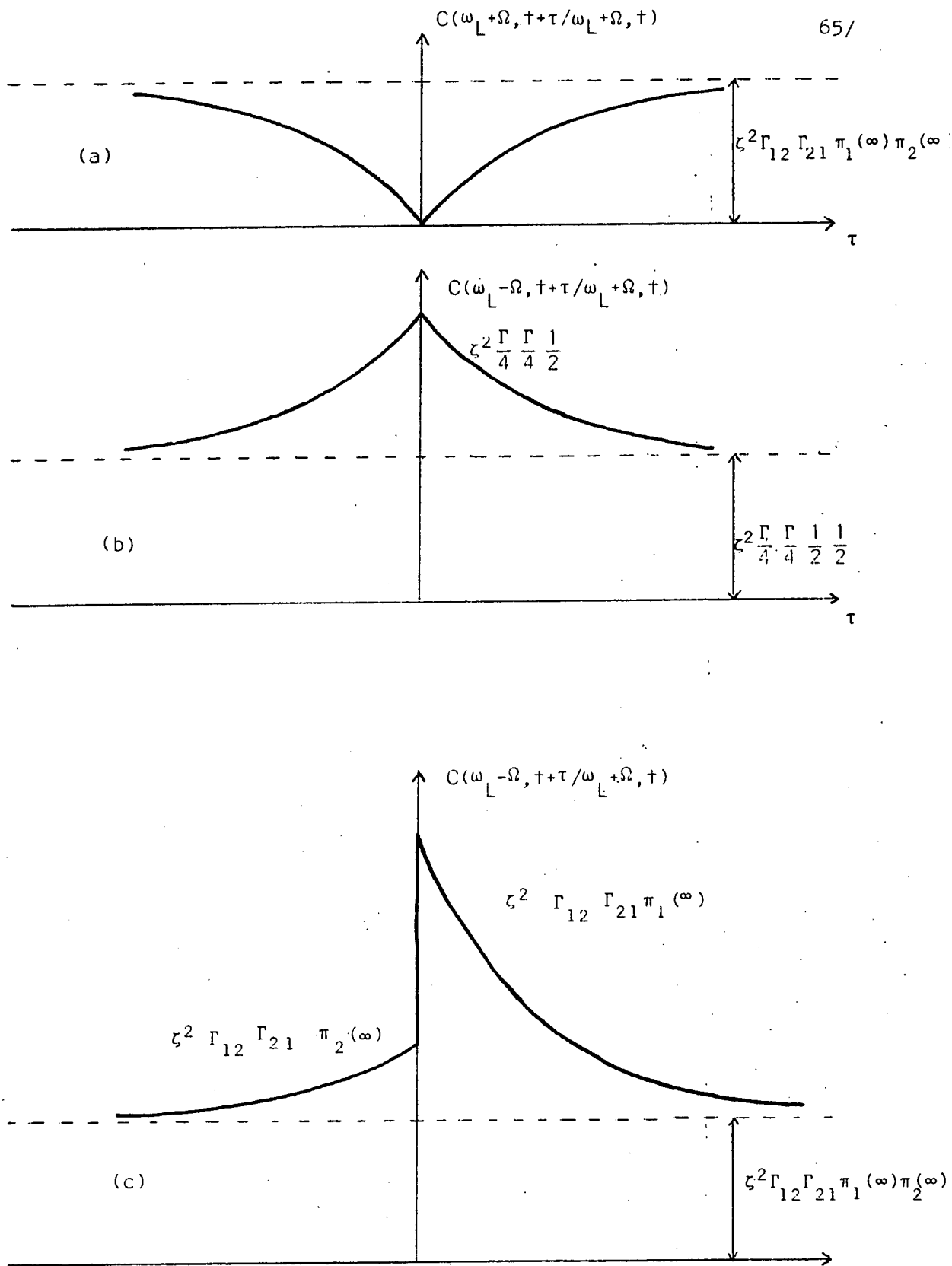


Figure 1-3.13: Le signal de corrélations entre photons d'une même raie latérale présente un effet de dégroupement et est toujours symétrique (a). Le signal de corrélations entre photons des deux bandes latérales présente un effet de groupement (b et c); il est symétrique pour $\delta=0$ (b) et dissymétrique pour $\delta \neq 0$ (c) ($\delta \approx 0,2 \omega_1$ sur la figure).

et (1-3.97) celles qui font intervenir des composantes du dipole non transmises par les filtres. On voit alors que les contributions apparaissant dans $C_{coh}(t+\tau, t)$ sont toujours éliminées ce qu'explique bien la figure 1-3.12 : elles font en effet intervenir deux composantes du dipole différentes aussi bien pour le premier photon que pour le second. Les signaux de corrélations filtrés s'expriment donc uniquement en termes de populations et les expressions correspondantes ont une interprétation très simple. Par exemple :

$$C(\omega_L + \Omega, t + \tau / \omega_L + \Omega, t) = \zeta^2 \Gamma_{21} \pi(1, \tau/2) \Gamma_{21} \pi_1(\infty) \quad (1-3.99)$$

Le premier filtre sélectionne les transitions de fréquence $\omega_L + \Omega$ ($|1, n\rangle \rightarrow |2, n-1\rangle$). Après la première détection, l'atome habillé est donc dans l'état $|2, n-1\rangle$. Il ne peut donc émettre un second photon $\omega_L + \Omega$ qu'après être repassé dans un état $|1, n'\rangle$: c'est pourquoi apparaît dans l'expression (1-3.99) $\pi(1, \tau/2)$, population réduite π_1 à l'instant τ lorsque l'atome habillé est initialement dans les états $|2, n\rangle$. Ce signal présente un effet de dégroupement

$$C(\omega_L + \Omega, t + 0 / \omega_L + \Omega, t) = 0 \quad (1-3.100)$$

($\pi(1, \tau/2) = 0$ pour τ tendant vers 0).

Par contre le signal :

$$C(\omega_L - \Omega, t + \tau / \omega_L + \Omega, t) = \zeta^2 \Gamma_{12} \pi(2, \tau/2) \Gamma_{21} \pi_1(\infty) \quad (1-3.101)$$

présente un effet de groupement : immédiatement après l'émission d'un photon $\omega_L + \Omega$, l'atome habillé se trouve dans l'état $|2, n-1\rangle$ où il a une probabilité d'émettre un photon $\omega_L - \Omega$ plus grande que dans le régime stationnaire :

$\pi(2, \tau/2)$ est égal à 1 pour $\tau=0$ et est plus grand que $\pi_2(\infty)$.

On vérifie dans les deux expressions (1-3.99) et (1-3.101) que pour $\tau \gg 1/\Gamma$ le signal de corrélation correspond à la détection de deux photons non corrélés et s'écrit :

$$C_{\beta\alpha}(t+\infty, t) = I_{\beta}(\infty) I_{\alpha}(\infty) \quad (1-3.102)$$

Connaissant la valeur initiale $C_{\beta\alpha}(t+0, t)$ et la valeur stationnaire $C_{\beta\alpha}(t+\infty, \tau)$ du signal, on peut en déduire simplement sa variation en fonction de τ en remarquant que le signal doit être, comme les populations, la somme d'une contribution stationnaire et d'une contribution transitoire exponentiellement amortie

$$C_{\beta\alpha}(t+\tau, t) = C_{\beta\alpha}(t+\infty, t) + (C_{\beta\alpha}(t+0, t) - C_{\beta\alpha}(t+\infty, t)) \exp(-\tau/\tau_{\text{pop}}) \quad (1-3.103)$$

On obtient par exemple le signal de corrélation entre photons d'une même raie latérale :

$$\alpha = \pm 1 \quad C_{\alpha\alpha}(t+\tau, t) = I_{\alpha}^2 (1 - \exp(-\tau/\tau_{\text{pop}})) \quad (1-3.104)$$

(on a remplacé dans 1-3.103 $C_{\alpha\alpha}(t+0, t)$ par 0 et $C_{\alpha\alpha}(t+\infty, t)$ par I_{α}^2). On calcule de la même façon le signal de corrélation entre photons des deux bandes latérales en reportant la valeur de $C_{\beta\alpha}(t+0, t)$ dans 1-3.103.

Les résultats sont rassemblés sur la figure 1-3.13 : nous avons représenté les signaux pour des valeurs de τ positives ou négatives en posant par définition

$$C(\omega_L + \alpha\Omega, t - \tau/\omega_L + \beta\Omega, t) = C(\omega_L + \beta\Omega, t + \tau/\omega_L + \alpha\Omega, t) \quad (1-3.105)$$

La corrélation entre photons d'une même raie latérale est évidemment symétrique (d'après la définition 1-3.105). Par contre la corrélation entre photons des deux raies latérales n'est pas toujours symétrique : en effet $C(\omega_L - \Omega, t + \tau/\omega_L + \Omega, t)$ et $C(\omega_L + \Omega, t + \tau/\omega_L - \Omega, t)$ ont la même valeur asymptotique pour $\tau \rightarrow \infty$ (d'après 1-3.102), la même constante de temps τ_{pop} (d'après 1-3.103) mais ont en général des valeurs initiales différentes (se reporter à 1-3.101)

$$\begin{aligned} C(\omega_L - \Omega, t+0/\omega_L + \Omega, t) &= \zeta^2 \Gamma_{12} \Gamma_{21} \pi_1(\infty) \\ C(\omega_L + \Omega, t+0/\omega_L - \Omega, t) &= \zeta^2 \Gamma_{21} \Gamma_{12} \pi_2(\infty) \end{aligned} \quad (1-3.106)$$

Ces deux valeurs sont égales (et donc la corrélation est symétrique) seulement si les deux populations stationnaires $\pi_1(\infty)$ et $\pi_2(\infty)$ sont égales c'est-à-dire si l'excitation est résonnante ($\delta=0$) (Fig. 1-3.13)

On peut exprimer aussi les signaux dans le cas où un filtre sélectionne la raie centrale par exemple :

$$C(\omega_L, t+\tau/\omega_L + \Omega, t) = \zeta^2 [\Gamma_{11} \pi(1, \tau/2) + \Gamma_{22} \pi(2, \tau/2)] \Gamma_{21} \pi_1(\infty) \quad (1-3.107)$$

$$C(\omega_L + \Omega, t+\tau/\omega_L, t) = \zeta^2 [\Gamma_{21} \pi(1, \tau/2) \Gamma_{11} \pi_1(\infty) + \Gamma_{21} \pi(1, \tau/2) \Gamma_{22} \pi_2(\infty)] \quad (1-3.108)$$

L'interprétation de ces expressions est aussi simple que précédemment : il suffit d'ajouter les contributions des transitions de fréquence $\omega_L : |1, n\rangle \rightarrow |1, n-1\rangle$ et $|2, n\rangle \rightarrow |2, n-1\rangle$.

On peut démontrer pour tous ces signaux qui font intervenir la raie centrale ($\beta=0$ ou $\alpha=0$) que :

$$\beta=0 \quad \text{ou} \quad \alpha=0 : C_{\beta\alpha}(t+0, t) = C_{\beta\alpha}(t+\infty, t) = I_\beta I_\alpha \quad (1-3.109)$$

On en déduit donc d'après (1-3.103) que :

$$\beta=0 \quad \text{ou} \quad \alpha=0 : C_{\beta\alpha}(t+\tau, t) = I_\beta I_\alpha \quad (1-3.110)$$

Tous ces signaux sont donc indépendants de τ .

1-3.6 La distribution $q(m, T)$ du nombre m de photons détectés pendant un temps T

La valeur moyenne $\bar{m}$ du nombre m de photons détectés pendant un temps T est tout simplement

$$\bar{m} = IT = \zeta \Gamma \pi_e(\infty) T \quad (1-3.111)$$

puisque I est le nombre moyen de photons détectés par unité de temps (on se limite au régime stationnaire). On peut se demander quelle est la distribution $q(m, T)$ de ce nombre.

On montre dans l'appendice A1 que l'on peut calculer $q(m, T)$ avec les techniques déjà utilisées pour les autres signaux : expression de $q(m, T)$ à partir des fonctions de corrélation du dipole atomique, calcul de ces fonctions de corrélation grâce au théorème de régression quantique, etc..... Nous discutons ici les résultats essentiels de ce calcul et la relation entre ce signal $q(m, T)$ et la cascade radiative de l'atome habillé.

Lien entre la distribution du nombre de photons détectés et la distribution du nombre de photons émis.

Appelons $q_1(m, T)$ la distribution que l'on obtiendrait si l'on détectait tous les photons émis (autrement dit si ζ était égal à 1) ; en d'autres termes, $q_1(m, T)$ est la distribution du nombre de photons émis pendant le temps T alors que $q(m, T)$ est la distribution du nombre de photons détectés. La relation suivante entre q et q_1 est démontrée dans l'appendice A1 :

$$q(m, T) = \sum_{m'=0}^{\infty} p(m, m') q_1(m+m', T) \quad (1-3.112)$$

avec :

$$p(m, m') = \zeta^m (1-\zeta)^{m'} (m+m')! / (m! m'!) \quad (1-3.113)$$

Cette relation a une interprétation extrêmement simple : $p(m, m')$ est la probabilité pour que m photons soient détectés et m' non détectés lorsque $(m + m')$ photons sont émis ; il y a en effet $(m + m')! / (m! m'!)$ façons de choisir les m photons détectés parmi les $(m + m')$ photons émis et la probabilité correspondant à l'une quelconque de ces possibilités est $\zeta^m (1-\zeta)^{m'}$. La relation (1-3.112) signifie que la statistique $q(m, T)$ du nombre de photons détectés est en quelque sorte la "convolution" de la statistique q_1 du nombre de photons émis par la statistique p du détecteur.

Lien avec la cascade radiative

On montre ensuite (Appendice A 1) que la distribution q_1 du nombre de photons émis est reliée étroitement à la cascade radiative de l'atome habillé, cette relation ayant une interprétation très naturelle : si l'atome habillé est dans la multiplicité $\&_n$ à $t=0$ et dans $\&_{n'}$ à $t=T$, alors le nombre m de photons émis pendant le temps T est $m = n - n'$.

Pour obtenir la distribution $q_1(m, T)$, il suffit donc de résoudre les équations de la cascade radiative. Plus précisément, supposons que l'atome habillé soit à l'instant $t=0$ dans la multiplicité $\&_n$ c'est-à-dire que :

$$\sigma_{n'}(0) = 0 \quad \text{si } n' \neq n \quad (1-3.114)$$

(σ_n est la matrice densité restreinte à la multiplicité $\&_n$). Alors $q_1(m, T)$ est égal à la probabilité que l'atome habillé soit dans la multiplicité $\&_{n-m}$ à l'instant T

$$q_1(m, T) = \text{Tr } \sigma_{n-m}(T) \quad (1-3.115)$$

En résolvant les équations de la cascade (c'est-à-dire les équations (1-2.6) d'évolution des σ_n), on retrouve la valeur moyenne $\bar{m}$ (eq. 1-3.111 avec $\zeta = 1$) et on montre que lorsqu'un grand nombre de photons a été émis ($\bar{m} \gg 1$), la distribution $q_1(m, T)$ est une gaussienne:

$$q_1(m, T) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} \Delta m} \exp \left[-(m - \bar{m})^2 / 2(\Delta m)^2 \right] \quad (1-3.116)$$

La dispersion Δm de la distribution peut être écrite :

$$(\Delta m)^2 = \bar{m} (1 + 2a_1) \quad (1-3.117)$$

avec :

$$a_1 = \int_0^\infty (\pi(e, \tau/g) - \pi_e(\infty)) d\tau \quad (1-3.118)$$

On aurait pu s'attendre à ce que la distribution q_1 soit poissonienne comme c'est souvent le cas. La dispersion Δm aurait alors été donnée par la relation bien connue

$$(\Delta m)^2 = \bar{m} \quad (1-3.119)$$

L'expression (1-3.117) de Δm montre donc que la distribution q_1 n'est pas une distribution de Poisson (le seul auteur qui ait évoqué le présent problème arrivait à la conclusion que $q_1(m, T)$ était poissonienne [Ab 18])

Interprétation du caractère non poissonien de g_1

Il est possible de comprendre pourquoi la distribution du nombre de photons émis n'est pas poissonienne en reliant cet effet au phénomène de dégrouement discuté lors de l'étude des corrélations de photons (§ 1-3.5). L'émission d'un photon de fluorescence "projette" l'atome habillé dans un état $|g, n+1\rangle$ et perturbe donc l'émission d'autres photons pendant le temps τ^{-1} que dure le régime transitoire. Or, justement, l'intervalle de temps séparant l'émission de deux photons successifs est de l'ordre de τ^{-1} . Deux photons successivement émis sont donc fortement corrélés ce qui explique l'écart à la distribution de Poisson qui correspondrait à la statistique d'évènements indépendants les uns des autres.

L'expression (1-3.118) montre que l'effet de la corrélation des photons sur la distribution $q_1(m, T)$ s'exprime en fonction du seul paramètre a_1 qui est l'intégrale dans le régime transitoire de $(\pi(e, \tau/g) - \pi_e(\infty))$.

Discussion de la valeur de a_1

La transitoire $\pi(e, \tau/g)$ peut être exprimée en fonction des populations et cohérences réduites de l'atome habillé. Les cohérences oscillent à la fréquence Ω et leur contribution à l'intégrale (1-3.118) est négligeable (les arches positives compensent les arches négatives). Il reste la contribution des populations transitoires amorties en $\exp(-\tau/\tau_{op})$. On obtient ainsi :

$$a_1 = \cos^2\theta \sin^2\theta (\cos^4\theta - \sin^4\theta)^2 / (\cos^4\theta + \sin^4\theta)^2 \quad (1-3.120)$$

$$= \omega_1^2 \delta^2 / (\omega_1^2 + 2\delta^2)^2$$

a_1 est égal à 0 dans le cas d'une excitation résonnante ($\delta=0$) ; on aurait pu s'attendre au contraire à ce que la corrélation entre deux photons successivement émis soit maximale à résonance. Ce résultat surprenant s'explique bien par l'allure de $\pi(e, \tau/g)$ à résonance (Fig 1-3.14). En effet, après moyenne sur une période, $\pi(e, \tau/g)$ ne dépend plus de τ (droite horizontale de la figure 1-3.14) ; autrement dit, il n'y a pas de régime transitoire des populations à résonance. Tout se passe comme si les photons émis successivement étaient décorrélés et la distribution q_1 est poissonnienne.

On a représenté sur la Figure 1-3.15 l'allure de la même fonction $\pi(e, \tau/g)$ dans le cas ($\omega_1^2 = 2\delta^2$) où a_1 est le plus grand ($a_1 = 1/8$). Après moyenne sur l'oscillation à la fréquence Ω , il reste une variation exponentielle correspondant à l'évolution transitoire des populations. Quand un photon est émis, la probabilité d'émission d'un autre photon est plus importante pendant l'intervalle τ^{-1} qui suit. Il faut noter que a_1 est positif ce qui signifie que la distribution $q(m, T)$ est plus dispersée qu'une distribution poissonnienne correspondant au même nombre moyen de photons.

Effet du taux de détection ζ sur la statistique du nombre de photons détectés.

On peut revenir maintenant à la distribution $q(m, T)$ du nombre de photons détectés. On montre que $q(m, T)$ est aussi une distribution gaussienne ; sa dispersion Δm est liée à sa valeur moyenne $\bar{m}$ par

$$(\Delta m)^2 = \bar{m} (1 + 2\zeta a_1) \quad (1-3.121)$$

Cette formule montre que l'écart à la distribution poissonnienne est plus petit pour les photons détectés que pour les photons émis, d'autant plus que ζ est plus petit.

Cette propriété a une interprétation simple : l'intervalle de temps moyen séparant deux photons détectés est maintenant $(\Gamma\zeta)^{-1}$ (plus long que Γ^{-1}) alors que la durée du régime transitoire reste Γ^{-1} . Deux détections successives sont en moyenne deux événements moins corrélés que deux émissions successives ce qui explique que la statistique de détection soit plus proche d'une statistique poissonnienne que la statistique d'émission. A la limite $\zeta \ll 1$ (ce qui est le cas expérimental) la distribution du nombre de photons détectés est poissonnienne ($(\Delta m)^2 = \bar{m}$).

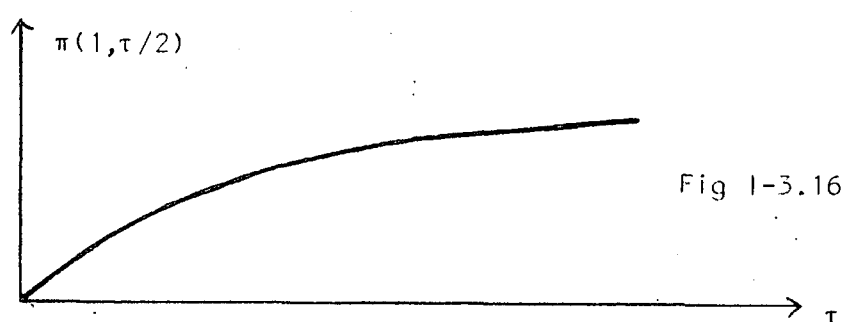
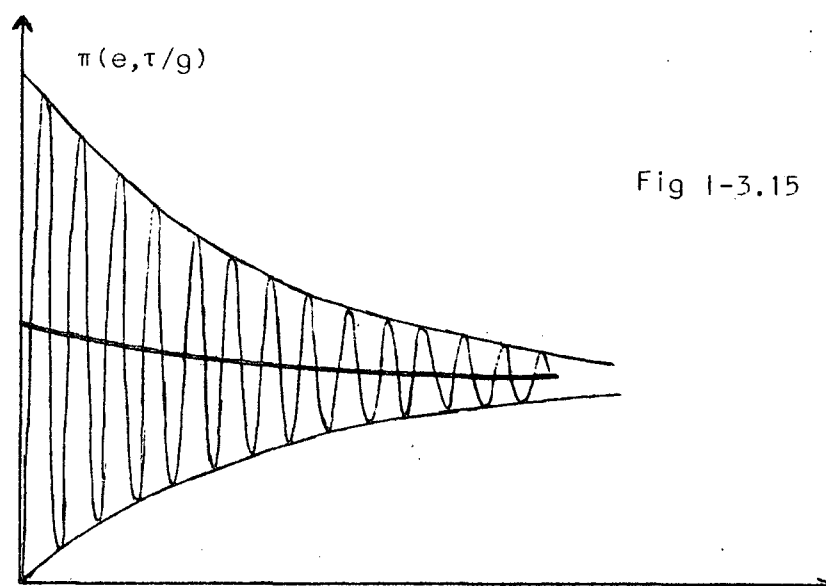
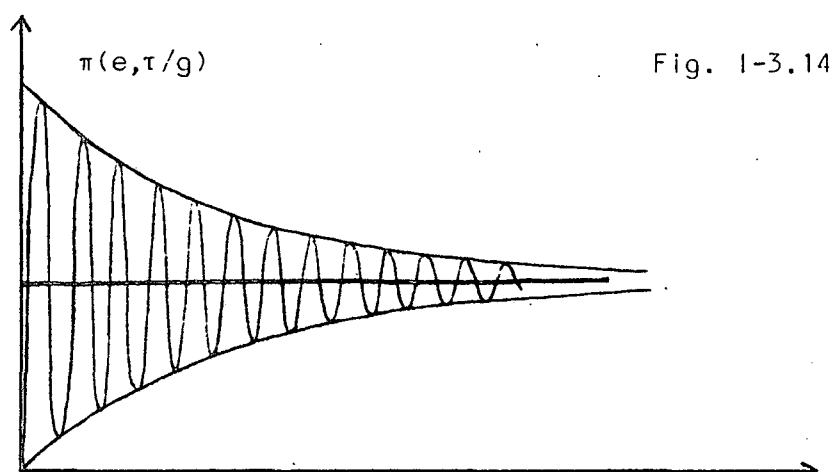


Fig 1-3.14 Variation avec τ de $\pi(e, \tau/g)$ à résonance ($\delta=0$)

Après moyenne sur une période, $\pi(e, \tau/g)$ ne dépend plus de τ (droite horizontale).

Fig 1-3.15 Même figure hors résonance (précisément $\omega_1^2 = 2\delta^2$)

Après moyenne sur une période, il reste une variation exponentielle correspondant au régime transitoire des populations.

Fig 1-3.16 : Evolution transitoire de $\pi(1, \tau/2)$ de sa valeur initiale nulle vers sa valeur stationnaire.

Ainsi l'allure de $q(m, T)$ est modifiée par la statistique du détecteur alors que le signal de corrélation de photon est simplement diminué globalement (d'un facteur ζ^2).

Statistique du nombre de photons émis dans une raie du triplet

On montre dans l'appendice A1 que l'on peut aussi calculer la distribution du nombre de photons émis dans une des raies du triplet.

Supposons par exemple que l'on choisisse la raie de fréquence $\omega_L + \Omega$. Le nombre moyen de photons émis est

$$\bar{m} = I(\omega_L + \Omega) T = \Gamma_{21} \pi_1(\infty) T \quad (1-3.122)$$

On trouve pour valeur de la dispersion

$$\Delta m^2 = m(1 + 2a_1) \quad (1-3.123)$$

avec

$$a_1 = \int_0^\infty \Gamma_{21} (\pi(1, \tau/2) - \pi_1(\infty)) d\tau \quad (1-3.124)$$

$$= -\frac{1}{4} \frac{\omega_1^4}{(\omega_1^2 + 2\delta^2)^2} \quad (1-3.125)$$

Quand un photon $\omega_L + \Omega$ est émis, la probabilité d'émission d'un autre photon $\omega_L + \Omega$ est moins importante pendant l'intervalle Γ^{-1} qui suit (Fig 1-3.16). a_1 est alors négatif ce qui signifie que la distribution est moins dispersée qu'une distribution poissonienne.

On obtient le même résultat pour la raie $\omega_L - \Omega$. Par contre, pour la raie centrale, on a vu (§ 1-3.4) qu'il n'y a aucun régime transitoire après l'émission d'un photon. La distribution du nombre de photons émis dans la raie centrale est donc poissonienne.

1-3.7 La limite perturbative $\omega_1 \ll \delta$

Il est intéressant de voir ce que deviennent les résultats de ce chapitre à la limite perturbative $\omega_1 \ll \delta$ c'est-à-dire lorsque le phénomène peut être décrit aussi par les diagrammes de Feynman d'ordres 1 et 2 (Fig 1-3.17)

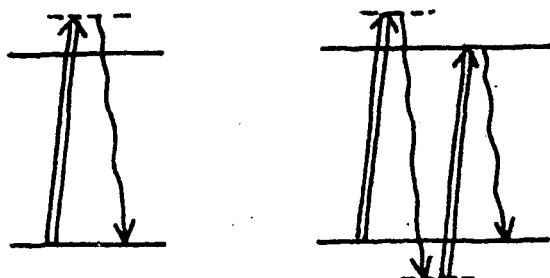


Figure 1-3.17

Les niveaux habillés s'écrivent alors :

$$\begin{aligned} |1, n\rangle &= |g, n+1\rangle + \epsilon |e, n\rangle \\ |2, n\rangle &= |e, n\rangle - \epsilon |g, n+1\rangle \end{aligned} \quad (1-3.122)$$

avec :

$$\epsilon = \omega_L / 2\delta \quad (1-3.123)$$

(ces relations correspondent à $\omega_L > \omega_0$; pour $\omega_L < \omega_0$ il faudrait échanger les rôles de $|1, n\rangle$ et $|2, n\rangle$). On en déduit les taux de transition

$$\begin{aligned} \Gamma_{12} &= \Gamma \quad (\text{fréquence } \omega_0) \\ \Gamma_{21} &= \Gamma \epsilon^4 \quad (\text{fréquence } 2\omega_L - \omega_0) \\ \Gamma_{11} &= \Gamma_{22} = \Gamma \epsilon^2 \quad (\text{fréquence } \omega_L) \end{aligned} \quad (1-3.124)$$

et les populations stationnaires :

$$\pi_1(\infty) = 1 \quad \pi_2(\infty) = \epsilon^4 \quad (1-3.125)$$

Spectre de fluorescence

On obtient pour le poids des raies

$$I_{el} = \zeta \Gamma \epsilon^2 \quad (1-3.126)$$

$$I(\omega_0) = I(2\omega_L - \omega_0) = \zeta \Gamma \epsilon^4 \quad (1-3.127)$$

$$I_{inel}(\omega_L) = 4 \zeta \Gamma \epsilon^6 \quad (1-3.128)$$

Les deux premiers résultats s'expliquent bien par les diagrammes perturbatifs (Fig 1-3.17) . Le troisième signifie que l'on obtiendrait la raie centrale inélastique en étudiant le diagramme perturbatif correspondant à la diffusion de 3 photons.

Corrélations de photons

On trouve à l'ordre le plus bas en ϵ

$$C(t+\tau, t) = J(\tau) I \quad (1-3.129)$$

avec

$$I = \zeta \Gamma \epsilon^2 \quad (1-3.130)$$

$$J(\tau) = \zeta \Gamma \epsilon^2 [1 + \exp(-\Gamma\tau) - 2 \cos \delta\tau \exp(-\Gamma\tau/2)] \quad (1-3.131)$$

Ce signal de corrélation est en ϵ^4 . Il oscille à une fréquence δ beaucoup plus grande que la fréquence de Rabi ω_1 . On trouve le même résultat qu'en calculant le signal de corrélation à partir des diagrammes perturbatifs [Ae 3]

Corrélations entre photons filtrés

A l'ordre le plus bas (c'est-à-dire en ϵ^4), il n'y a que deux signaux de corrélations entre photons filtrés qui soient non nuls (Fig 1-3.18):

$$C(\omega_L, t+\tau/\omega_L, t) = \zeta^2 \Gamma^2 \epsilon^4 \quad (1-3.132)$$

$$C(\omega_0, t+\tau/2\omega_L-\omega_0, t) = \zeta^2 \Gamma^2 \epsilon^4 \exp(-\Gamma\tau) \quad (1-3.133)$$

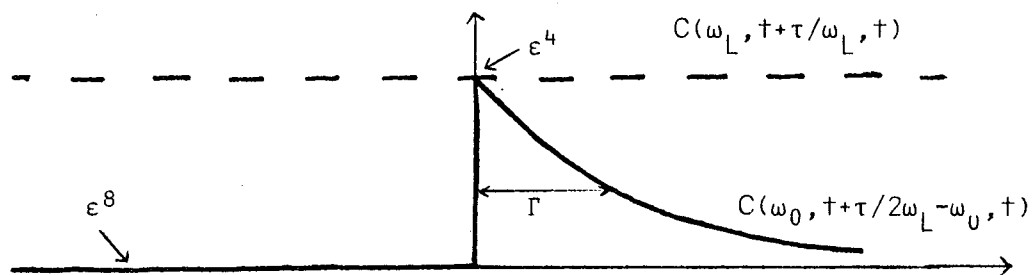


Figure 1-3.18

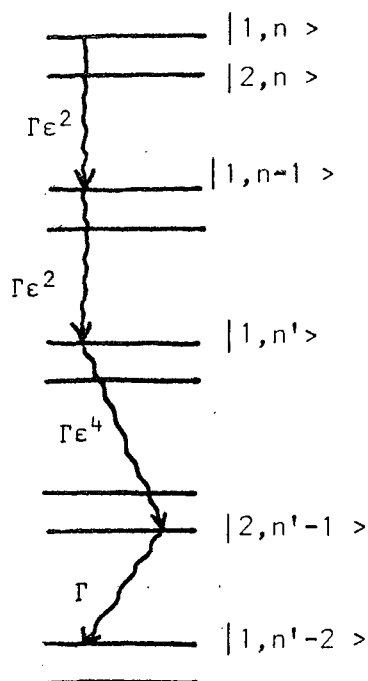
Le résultat est encore en parfait accord avec les diagrammes perturbatifs (Fig 1-3.17) : l'expression (1-3.132) correspond à la détection de deux photons Rayleigh indépendants ; l'expression (1-3.133) correspond à la détection des photons $2\omega_L - \omega_0$ et ω_0 émis (dans cet ordre) dans le processus non linéaire représenté par le diagramme d'ordre 2 (Figure 1-3.117).

Nous avons vu (§ 1-3.5) que les signaux de corrélation entre photons des deux raies latérales est dissymétrique dès que le désaccord δ n'est pas nul (Fig 1-3.13). Cette dissymétrie est particulièrement marquée lorsque $\omega_1 \ll \delta$ (Fig 1-3.18).

Il existe une façon intéressante d'analyser ce résultat en revenant à la cascade radiative de l'atome habillé : partant de $|1, n\rangle$, l'atome habillé

a une probabilité $\Gamma\epsilon^2$ (par unité de temps) d'émettre un photon ω_L et une probabilité beaucoup plus petite $\Gamma\epsilon^4$ d'émettre un photon $2\omega_L - \omega_0$; la cascade radiative est donc essentiellement une suite de transitions $|1, n\rangle \rightarrow |1, n-1\rangle$ (séparées par un intervalle moyen $(\Gamma\epsilon^2)^{-1}$). Mais de temps en temps, il y a une transition $|1, n'\rangle \rightarrow |2, n'-1\rangle$ (une fois par intervalle de temps $(\Gamma\epsilon^4)^{-1}$). L'atome habillé a alors une probabilité très forte d'émettre un photon ω_0 et de revenir dans l'état $|1, n'-2\rangle$ (Fig. 1-3.19). Il reprend alors la suite d'émission de photons ω_L . Ceci explique la forte corrélation temporelle entre les photons $2\omega_L - \omega_0$ et ω_0 , la décroissance exponentielle de cette corrélation avec un temps caractéristique Γ^{-1} et l'ordre temporel.

Figure 1-3.19



Cette discussion qui relie le signal de corrélation entre photons filtrés $2\omega_L - \omega_0$ et ω_0 à la cascade radiative de l'atome habillé montre l'étroite analogie entre ce signal et les signaux habituels de cascade atomique ou nucléaire [Dd]

Conclusion :

Nous avons montré dans ce chapitre que la méthode de l'atome habillé permettait de calculer quantitativement tous les signaux de fluorescence.

Certains de ces signaux avaient déjà fait l'objet de nombreuses études expérimentales et théoriques. Nous avons dans ce cas retrouvé des résultats bien connus mais, en les reliant à la cascade radiative de l'atome habillé, nous en avons fourni une interprétation simple et naturelle : interprétation des fréquences d'émission comme les fréquences de Bohr permises entre niveaux de l'atome habillé, interprétation de la précession de Rabi amortie comme un signal de battement quantique entre niveaux habillés, interprétation de l'effet de dégroupement par l'étude temporelle de la cascade radiative de l'atome habillé.

La méthode de l'atome habillé est si bien adaptée à l'étude de la fluorescence de résonance qu'elle a de plus suggéré l'étude de nouveaux signaux : corrélations temporelles entre photons filtrés, distribution $q(m,T)$ du nombre m de photons détectés pendant un temps T donné.

Le signal de corrélations temporelles entre photons des deux bandes latérales nous a paru suffisamment intéressant pour que nous en entreprenions une étude expérimentale. Cette étude a été menée dans des conditions ($\omega_1 \ll \delta$) où une approche perturbative est aussi possible (voir § 1-3.7). On pourra trouver la description de cette expérience et une discussion plus détaillée du phénomène à partir des diagrammes perturbatifs en se reportant à la lettre reproduite dans la partie expérimentale de cette thèse (voir § III-4) et à la thèse de 3ème cycle de Jean Dalibard [Ae 3]

C H A P I T R E 1-4

L'EFFET DES COLLISIONS

Nous supposons maintenant que l'atome A soumis à l'irradiation laser subit de plus des collisions avec des atomes "perturbateurs". Cette situation se produit habituellement dans les expériences en phase vapeur où l'effet Doppler ne peut pas être ignoré. Dans ce chapitre, nous nous limitons à des collisions qui ne changent pas la vitesse et nous étudions les atomes ayant une vitesse donnée (les calculs sont menés dans le référentiel propre où les atomes émetteurs sont immobiles). Dans la partie II de la thèse, nous montrerons comment on peut sommer les contributions des différentes classes de vitesse.

Notre but n'est pas d'étudier les collisions en elles-mêmes. Il est plus simplement de discuter l'effet de ces collisions sur les signaux de fluorescence. C'est pourquoi nous décrirons les collisions par un modèle simple de "collisions élastiques" (§ 1-4.1). Nous montrons d'abord que l'on peut généraliser la méthode utilisée plus haut pour y inclure l'effet des collisions : on peut considérer que les collisions provoquent une relaxation supplémentaire de l'atome habillé et décrire cette relaxation par une équation pilote (§ 1-4.2).

Le problème est donc analogue au problème bien connu de la relaxation collisionnelle d'un atome mais il concerne un système, l'atome habillé, qui a un diagramme d'énergie beaucoup plus riche. Ainsi, la relaxation est décrite par des paramètres de type $1/T_1$ et $1/T_2$ correspondant respectivement à la redistribution de population entre niveaux de l'atome habillé et à l'amortissement des cohérences entre ces niveaux (§ 1-4.3). On montre alors comment on peut exprimer les caractéristiques des signaux de fluorescence (en particulier du spectre) en fonction de ces paramètres de relaxation collisionnelle et des taux de transition qui décrivent la relaxation par émission spontanée (§ 1-4.4).

Les paramètres collisionnels s'expriment en fonction de la matrice S décrivant une collision élémentaire (§ 1-4.3). Le problème difficile du calcul de la matrice S n'est pas du tout abordé ici et on ne peut donc obtenir la valeur explicite des paramètres de relaxation. Il existe toutefois

une situation particulière appelée "régime d'impact" où l'on peut exprimer ces paramètres en fonction des paramètres habituels décrivant la relaxation collisionnelle de l'atome nu. La discussion des résultats obtenus dans ce régime d'impact permet en particulier de montrer clairement comment des collisions "élastiques" pour l'atome nu induisent des transitions "inélastiques" dans l'atome habillé (§ 1-4.5).

On étudie enfin ce que deviennent nos résultats à la limite perturbative ($\omega_1 \ll \delta$).

1-4.1 Le modèle des collisions "élastiques"

Nous supposons vérifiées les hypothèses suivantes :

- (i) L'atome A subit des "collisions binaires" bien séparées dans le temps . Autrement dit, le temps τ_c caractéristique d'une collision est beaucoup plus court que le temps T_c séparant deux collisions successives subies par un même atome

$$\tau_c \ll T_c \quad (1-4.1)$$

- (ii) On doit donc considérer pendant une collision le système quantique formé par l'atome A, le champ laser et le perturbateur. Nous supposons que le perturbateur n'a pas de structure et que le rôle joué par les niveaux autres que g et e de l'atome A est négligeable. En particulier, on ne tient pas compte de la dégénérescence Zeeman des niveaux g et e et on ne décrit donc pas la redistribution de polarisation [Ce]
- (iii) On néglige les collisions changeant la vitesse et les collisions de "quenching" (qui provoqueraient une transition entre les deux niveaux g et e). On néglige également la réaction de la collision sur le mouvement des deux atomes que l'on décrit par une trajectoire classique rectiligne.

L'effet de ces collisions sur l'atome A en l'absence d'irradiation laser est bien connu : au cours de la collision, les deux niveaux e et g de l'atome sont déplacés de quantités différentes $\Delta E_e(t)$ et $\Delta E_g(t)$, ce qui provoque un déphasage ϕ du dipole optique

$$\phi = \int_{-\infty}^{+\infty} (\Delta E_e(t) - \Delta E_g(t)) dt \quad (1-4.2)$$

Il faut alors sommer l'effet de toutes les collisions correspondant aux différentes valeurs du paramètre d'impact b et de la vitesse v du perturbateur (qui est aussi la vitesse relative à l'atome A puisqu'on est dans le référentiel propre de A). L'effet global des collisions est décrit par la largeur collisionnelle γ et le déplacement collisionnel η donnés par la relation bien connue

$$\gamma + i\eta = \langle 1 - \exp(-i\phi) \rangle \quad (1-4.3)$$

la moyenne $\langle a \rangle$ d'une quantité quelconque $a(b,v)$ sur les valeurs de b et de v étant définie par

$$\langle a \rangle = N_p \int_0^\infty 2\pi b \, db \int_0^\infty v \, f(v) \, a(b,v) \, dv \quad (1-4.4)$$

($f(v)$ est la distribution des vitesses et N_p la densité volumique d'atomes perturbateurs)

On remarque que le temps de relaxation γ^{-1} est certainement plus grand que le temps T_c séparant deux collisions subies par le même atome (il est égal à T_c si les collisions sont "fortes", c'est-à-dire si chaque collision "détruit" le dipole). La relation (1-5.1) qui exprime que les collisions sont bien séparées implique donc

$$\tau_c \ll \gamma^{-1} \rightarrow \gamma \tau_c \ll 1 \quad (1-4.5)$$

ce qui signifie que l'effet global des collisions est extrêmement faible pendant le temps τ_c que dure une collision.

On supposera que la largeur collisionnelle γ est beaucoup plus petite que l'écart Ω entre les composantes du triplet :

$$\gamma \ll \Omega \quad (1-4.6)$$

ce qui permettra d'utiliser l'approximation séculaire.

1-4.2 L'équation pilote décrivant la relaxation collisionnelle de l'atome habillé

Les collisions étant bien séparées dans le temps ($\tau_c \ll T_c$ eq. 1-4.1), on peut décrire chaque collision individuelle par une matrice de collision $S(b,v)$ dépendant du paramètre d'impact b et de la vitesse v du perturbateur. On montre dans ce paragraphe comment on peut en déduire une

équation pilote décrivant l'évolution de la matrice densité σ de l'atome habillé.

Il est d'abord possible de déduire la matrice densité $\bar{\sigma}$ après la collision de celle σ avant la collision

$$\bar{\sigma} = S \sigma S^+ \quad (1-4.7)$$

La collision provoque donc une variation de la matrice densité

$$\bar{\sigma} - \sigma = S \sigma S^+ - \sigma \quad (1-4.8)$$

Voyons maintenant ce qui se passe pendant un intervalle de temps Δt tel que :

$$\tau_c \ll \Delta t \ll T_c \quad (1-4.9)$$

La condition $\Delta t \ll T_c$ signifie que la probabilité qu'une collision se produise pendant Δt est faible.

La probabilité :

$$dp(b, v) = 2\pi b \, db \, f(v) \, dv \, v \Delta t \, N_p \quad (1-4.10)$$

que se produise pendant Δt une collision correspondant à un paramètre d'impact b et à une vitesse v est à fortiori très petite devant 1 (l'effet moyen pendant Δt de telles collisions sur σ est faible). La condition $\tau_c \ll \Delta t$ signifie qu'une collision a le temps de se dérouler entièrement pendant l'intervalle Δt et qu'on peut donc calculer son effet sur σ par l'expression (1-4.8). Les collisions en train de se produire au début de l'intervalle où à sa fin représentent une proportion faible ($\tau_c/\Delta t$) et on peut les négliger.

On obtient finalement la variation $\Delta\sigma$ de la matrice densité entre t et $t + \Delta t$ en sommant les contributions des diverses valeurs de b et de v

$$\Delta\sigma = (\sigma(t + \Delta t) - \sigma(t)) \quad (1-4.11)$$

$$\begin{aligned} \Delta\sigma &= \int (S(b, v) \sigma S^+(b, v) - \sigma) dp(b, v) \\ &= \langle S \sigma S^+ - \sigma \rangle \Delta t \end{aligned} \quad (1-4.12)$$

(le symbole $\langle \rangle$ de moyenne sur les collisions étant celui défini par 1-4.4)

Si l'on définit une dérivée "moyennée"

$$d\sigma/dt = \Delta\sigma/\Delta t = (\sigma(t + \Delta t) - \sigma(t)) / \Delta t \quad (1-4.13)$$

on obtient donc une équation pilote décrivant l'évolution de la matrice densité moyennée sur les collisions et moyennée sur Δt ("coarse grained evolution").

$$d\sigma / dt = \langle S \sigma S^\dagger - \sigma \rangle \quad (1-4.14)$$

On peut écrire cette équation pilote dans la base des états propres de l'atome habillé. On néglige les collisions de "quenching" qui provoqueraient des transitions entre multiplicités différentes de l'atome habillé. La matrice S a donc des éléments de matrice non nuls seulement à l'intérieur de chaque multiplicité. Par suite de la périodicité du diagramme de l'atome habillé, ces éléments de matrice ne dépendent pas de n

$$\langle i, n | S | j, n \rangle = S_{ij} \quad (1-4.15)$$

On obtient ainsi

$$\langle i, n_1 | (S \sigma S^\dagger - \sigma) | j, n_2 \rangle = \sum_{i', j'} (S_{ii'} S_{jj'}^\dagger - \delta_{ii'} \delta_{jj'}) \langle i', n_1 | \sigma | j', n_2 \rangle \quad (1-4.16)$$

($\delta_{ii'}$ est le symbole de Kronecker ; on a utilisé la relation $S_{j'i'}^\dagger = S_{jj'}^\dagger$), et l'équation pilote (1-4.14) s'écrit sous la forme

$$\frac{d}{dt} \langle i, n_1 | \sigma | j, n_2 \rangle = \sum_{i', j'} R_{ij, i'j'} \langle i', n_1 | \sigma | j', n_2 \rangle \quad (1-4.17)$$

avec

$$R_{ij, i'j'} = \langle S_{ii'} S_{jj'}^\dagger - \delta_{ii'} \delta_{jj'} \rangle \quad (1-4.18)$$

1-4.3 Les paramètres importants de la relaxation collisionnelle

Les couplages par relaxation collisionnelle $R_{ij, i'j'}$ sont du même ordre que γ et beaucoup plus petits que Ω . Il est donc possible de négliger les couplages entre éléments de la matrice densité évoluant à des fréquences différentes (approximation séculaire). On va donc obtenir d'une part des équations décrivant l'évolution couplée des populations (relaxation de type $1/T_1$) et d'autre part des équations décrivant l'amortissement des cohérences et le déplacement de leur fréquence d'oscillation (relaxation de

type $1/T_2$). Ces équations s'écrivent :

$$\frac{d}{dt} \pi_{1n} = -\frac{d}{dt} \pi_{2n} = w(\pi_{2n} - \pi_{1n}) \quad (1-4.19)$$

avec :

$$w = \langle |S_{12}|^2 \rangle \quad (1-4.20)$$

$$\frac{d}{dt} \langle 1, n | \sigma | 2, n \rangle = -(\kappa + i\xi) \langle 1, n | \sigma | 2, n \rangle \quad (1-4.21)$$

$$\frac{d}{dt} \langle 2, n | \sigma | 1, n \rangle = -(\kappa - i\xi) \langle 2, n | \sigma | 1, n \rangle \quad (1-4.22)$$

avec : $\kappa + i\xi = \langle 1 - S_{11} S_{22}^* \rangle \quad (1-4.23)$

On a utilisé des relations entre les $R_{ij, i'j'}$ liées à l'unitarité de la matrice S

$$\langle |S_{12}|^2 \rangle = \langle |S_{21}|^2 \rangle = \langle 1 - |S_{11}|^2 \rangle = \langle 1 - |S_{22}|^2 \rangle \quad (1-4.24)$$

L'équation (1-4.19) décrit une redistribution de population entre les deux états habillés d'une multiplicité (Fig 1-4.1)

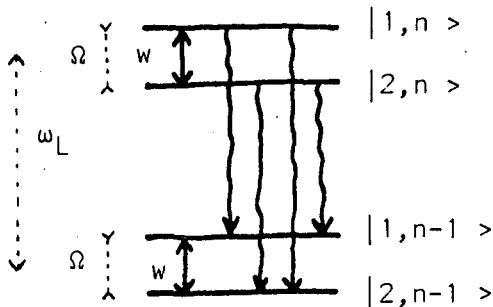


Figure 1-4.1 : Transitions entre niveaux habillés induites par émission spontanée (flèches ondulées) et par collisions (flèches droites)

Une différence importante entre la relaxation collisionnelle et la relaxation radiative apparaît clairement sur la figure 1-4.1 : les collisions induisent des transitions quasi-élastiques à l'intérieur d'une multiplicité alors que l'émission spontanée induit des transitions inélastiques entre multiplicités adjacentes ; l'énergie $\hbar\Omega$ mise en jeu dans une transition collisionnelle est beaucoup plus petite que l'énergie ($\sim \hbar\omega_0$) emportée par un photon de fluorescence.

La redistribution de population entre les deux états d'une multiplicité de l'atome habillé fournit par ailleurs un éclairage intéressant sur la représentation habituelle du phénomène où l'on considère que l'atome passe de g à e en absorbant un photon laser, le défaut en énergie étant fourni par les collisions (Fig 1-4.2)

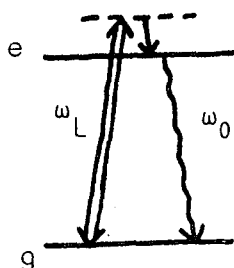


Figure 1-4.2 : Représentation habituelle de la fluorescence assistée par collisions

Le niveau "virtuel" (pointillé sur la Fig. 1-4.2) n'est rien d'autre qu'un niveau habillé (qui se réduit à $|g, n+1\rangle$ à la limite perturbative $\omega_L \ll \delta$) et la flèche droite représente en fait une transition réelle entre deux niveaux habillés correspondant au taux w introduit plus haut. Alors que la représentation habituelle (Fig 1-4.2) n'a de sens qu'à la limite perturbative, la méthode de l'atome habillé (Fig 1-4.1) reste valable dans la région non perturbative.

1-4.4 Modification des signaux de fluorescence par les collisions

Nous montrons dans ce paragraphe que toutes les caractéristiques des signaux de fluorescence peuvent être exprimées en fonction des trois paramètres w, κ , et ξ qui décrivent la relaxation collisionnelle et des taux de transition Γ_{ij} qui décrivent la relaxation radiative

Modification des populations stationnaires

La discussion du paragraphe précédent montre clairement que les populations stationnaires sont modifiées par la présence de collisions (voir en particulier la figure 1-4.1). Les transitions induites par collision du niveau le plus peuplé vers le niveau le moins peuplé sont plus nombreuses que les transitions inverses : les collisions ont donc tendance à égaliser les populations.

On le vérifie en écrivant les équations d'évolution des populations réduites contenant à la fois les termes de collisions et les termes radiatifs :

$$\frac{d}{dt} \pi_1 = - \frac{d}{dt} \pi_2 = (\Gamma_{12} + w)\pi_2 - (\Gamma_{21} + w)\pi_1 \quad (1-4.25)$$

La condition du bilan détaillé fait intervenir maintenant les transitions radiatives et collisionnelles

$$(\Gamma_{12} + w)\pi_2^{(\infty)} = (\Gamma_{21} + w)\pi_1^{(\infty)} \quad (1-4.26)$$

On en déduit les populations stationnaires en présence de collisions

$$\pi_1^{(\infty)} = (\Gamma_{12} + w)/(\Gamma_{12} + \Gamma_{21} + 2w) \quad (1-4.27)$$

$$\pi_2^{(\infty)} = (\Gamma_{21} + w)/(\Gamma_{12} + \Gamma_{21} + 2w)$$

et on vérifie que la différence de population diminue quand w augmente

$$\pi_1^{(\infty)} - \pi_2^{(\infty)} = (\Gamma_{12} - \Gamma_{21})/(\Gamma_{12} + \Gamma_{21} + 2w) \quad (1-4.28)$$

A résonance, les populations sont égales en l'absence de collisions ($\Gamma_{12} = \Gamma_{21}$) ; elles restent donc égales et ne sont pas modifiées par les collisions.

Modification du régime transitoire

La relaxation est plus efficace en présence de collisions et les temps d'amortissement du régime transitoire des populations (τ_{pop}) et des cohérences (τ_{coh}) sont tous les deux plus courts qu'en l'absence de collisions.

On calcule à partir de (1-4.25), (1-4.21) et (1-4.22) :

$$\tau_{\text{pop}} = (\Gamma_{12} + \Gamma_{21} + 2w)^{-1} \quad (1-4.29)$$

$$\tau_{\text{coh}} = \left(\Gamma \left(\frac{1}{2} + \cos^2 \theta \sin^2 \theta \right) + \kappa \right)^{-1} \quad (1-4.30)$$

Il faut noter que la fréquence d'oscillation des cohérences est modifiée par les collisions (d'après les équations 1-4.21 et 1-4.22). Elle devient

$$\bar{\Omega} = \Omega + \xi \quad (1-4.31)$$

Ayant calculé les populations stationnaires et les temps caractéristiques du régime transitoire, on peut en déduire toutes les carac-

téristiques des signaux de fluorescence . On discute ici les résultats relatifs à l'intensité totale stationnaire et au spectre de fluorescence.

Intensité totale stationnaire

L'intensité totale I de la fluorescence est, dans le régime stationnaire,

$$I = \zeta [\Gamma_1 \pi_1(\infty) + \Gamma_2 \pi_2(\infty)]$$

$$= \zeta \frac{\Gamma}{2} (\Gamma \cos^2 \theta \sin^2 \theta + w) / (\Gamma (\cos^4 \theta + \sin^4 \theta) + w) \quad (1-4.32)$$

On peut vérifier sur l'expression (1-4.32) que I augmente lorsque w augmente. Le nombre de photons laser absorbés par unité de temps étant égal au nombre de photons émis, c'est-à-dire à I si tous les photons émis sont détectés ($\zeta=1$), on en déduit que les collisions favorisent l'absorption de photons laser.

Raies latérales du spectre de fluorescence

En l'absence de collisions, les poids des deux raies latérales étaient égaux (§ 1-3.4). En effet, le régime stationnaire correspondait alors à un équilibre entre les transitions à la fréquence $\omega_L + \Omega$ ($|1, n\rangle \rightarrow |2, n-1\rangle$) et les transitions à la fréquence $\omega_L - \Omega$ ($|2, n\rangle \rightarrow |1, n-1\rangle$). Les transitions induites par collisions suppriment cet équilibre et les poids des deux raies latérales ne sont plus égaux.

Les poids modifiés s'obtiennent comme produit du taux de transition (non modifié) par la population du niveau supérieur (modifiée par les collisions selon les eq. 1-4.27). Pour $\zeta = 1$, on a :

$$I(\omega_L + \Omega) = \Gamma_{21} \pi_1(\infty) = \Gamma_{21} (\Gamma_{12} + w) / (\Gamma_{12} + \Gamma_{21} + 2w)$$

$$I(\omega_L - \Omega) = \Gamma_{12} \pi_2(\infty) = \Gamma_{12} (\Gamma_{21} + w) / (\Gamma_{12} + \Gamma_{21} + 2w) \quad (1-4.33)$$

Le cas de l'excitation résonnante ($\delta=0$) fait exception à la discussion ci-dessus : en effet, dans ce cas, les deux populations ne sont pas modifiées par les collisions et les poids des deux raies latérales restent égaux ($\Gamma_{12} = \Gamma_{21}$ dans 1-4.33).

La relaxation collisionnelle a le même effet sur la cohérence optique $\langle 2, n-1 | \sigma | 1, n \rangle$ que sur la cohérence basse fréquence, $\langle 2, n | \sigma | 1, n \rangle$ (voir l'équation pilote 1-4.17). On démontre donc avec les mêmes arguments que dans le § 1-3.4 que les largeurs des deux raies latérales sont

$$\begin{aligned} L(\omega_L \pm \Omega) &= 2(\tau_{\text{coh}})^{-1} \\ &= \Gamma(1 + 2\cos^2 \theta \sin^2 \theta) + 2\kappa \end{aligned} \quad (1-4.34)$$

Comme pour les cohérences basse fréquence, la fréquence d'oscillation des cohérences optiques est déplacée. Autrement dit les raies latérales subissent un déplacement collisionnel et ont donc pour position précise

$$\omega_L \pm \bar{\Omega} = \omega_L \pm (\Omega + \xi) \quad (1-4.35)$$

Raie centrale

Le poids total $I(\omega_L)$ de la raie centrale est (pour $\zeta=1$)

$$\begin{aligned} I(\omega_L) &= \Gamma_{11}\pi_1(\infty) + \Gamma_{22}\pi_2(\infty) \\ &= \Gamma_{11} \end{aligned} \quad (1-4.36)$$

($\Gamma_{11} = \Gamma_{22}$ d'après 1-2.15). Il n'est donc pas modifié par les collisions. Par contre la structure de la raie centrale est très sensible aux collisions. En effet le poids de la raie élastique est

$$\begin{aligned} I_{\text{el}} &= \Gamma_{11}(\pi_1(\infty) - \pi_2(\infty))^2 \\ &= \Gamma_{11}(\Gamma_{12} - \Gamma_{21})^2 / (\Gamma_{12} + \Gamma_{21} + 2w)^2 \end{aligned} \quad (1-4.37)$$

(voir 1-3.72 pour la première égalité, 1-4.28 pour la seconde). Il diminue donc en présence de collisions et le poids de la raie centrale inélastique augmente alors puisque la somme des deux, $I(\omega_L)$, est constante. On peut enfin calculer la largeur de la raie centrale inélastique (voir § 1-3.4)

$$\begin{aligned} L_{\text{inel}}(\omega_L) &= 2(\tau_{\text{pop}})^{-1} \\ &= 2(\Gamma_{12} + \Gamma_{21} + 2w) \end{aligned} \quad (1-4.38)$$

Remarquons que l'élargissement collisionnel $4w$ de la raie centrale inélastique est relié directement au taux de redistribution w qui détermine par ailleurs

les poids des raies latérales. Cette relation indépendante de la valeur explicite de w pourrait éventuellement être vérifiée expérimentalement.

Limite où la relaxation collisionnelle est prédominante

Les résultats précédents prennent une forme très simple lorsque la relaxation collisionnelle est beaucoup plus importante que la relaxation radiative

$$\Gamma \ll w \quad (1-4.39)$$

En effet, les populations stationnaires sont alors égales

$$\pi_1(\infty) = \pi_2(\infty) = 1/2 \quad (1-4.40)$$

et elles sont ainsi indépendantes aussi bien des taux de relaxation radiative Γ_{12} et Γ_{21} que du taux de redistribution w .

Les poids des trois raies dépendent alors uniquement des taux radiatifs

$$\begin{aligned} I(\omega_L + \Omega) &= \frac{\Gamma}{2} \cos^4 \theta = \Gamma (\Omega - \delta)^2 / 8\Omega^2 \\ I(\omega_L - \Omega) &= \frac{\Gamma}{2} \sin^4 \theta = \Gamma (\Omega + \delta)^2 / 8\Omega^2 \end{aligned} \quad (1-4.41)$$

$$I(\omega_L) = \Gamma \sin^2 \theta \cos^2 \theta = \Gamma w^2 / 4\Omega^2$$

La composante élastique disparaît et les trois raies sont donc des lorentziennes dont les largeurs sont déterminées par les paramètres collisionnels

$$\begin{aligned} L(\omega_L \pm \Omega) &= 2\kappa \\ L(\omega_L) &= 4w \end{aligned} \quad (1-4.42)$$

Remarque :

Le taux de redistribution w est identique au "taux de collisions optiques" de Lisitsa et Yakovlenko [Cd 1]. Le résultat obtenu pour l'intensité totale I de la fluorescence (I-4.32) est identique au résultat de Lisitsa et Yakovlenko. On peut donc considérer que le traitement des collisions développé ici est une généralisation de celui de Lisitsa et Yakovlenko permettant de calculer toutes les caractéristiques de la fluorescence et pas seulement l'intensité totale.

1-4.5 Expression des paramètres décrivant la relaxation collisionnelle dans le régime d'impact

Nous venons de montrer que les signaux de fluorescence peuvent être calculés dès que l'on connaît les paramètres w , κ et ξ . Mais le calcul de ces paramètres (calcul de la matrice S puis sommation sur les collisions) constitue à lui seul un problème très difficile [Cd] que nous n'aborderons pas ici dans le cas général. Toutefois ce problème se simplifie considérablement dans le "régime d'impact" défini par les conditions

$$\omega_1 \tau_c \ll 1 \quad (1-4.43a)$$

$$\text{et} \quad \delta \tau_c \ll 1 \quad (1-4.43b)$$

Nous montrons en effet dans ce paragraphe que l'on peut dans ce cas exprimer les paramètres w , κ et ξ en fonction des paramètres γ et n décrivant la relaxation collisionnelle de l'atome nu en l'absence d'irradiation laser.

Considérons une collision entre un perturbateur et un atome A et supposons que l'atome habillé soit, avant la collision, dans son état propre

$$|1, n\rangle = \cos \theta |e, n\rangle + \sin \theta |g, n+1\rangle \quad (1-4.44)$$

A cause de la condition $\omega_1 \tau_c \ll 1$, on peut négliger les transitions entre $|e, n\rangle$ et $|g, n+1\rangle$ induites pendant la collision par le couplage atome-laser : ce couplage caractérisé par ω_1 n'est pas assez fort pour avoir un effet pendant le temps de collision τ_c . L'état après la collision, $|\overline{1, n}\rangle$, est donc donné par :

$$|\overline{1, n}\rangle = \cos \theta \exp(-i\phi') |e, n\rangle + \sin \theta \exp(-i\phi'') |g, n+1\rangle \quad (1-4.45)$$

où ϕ' et ϕ'' sont les déphasages pendant la collision des deux états découplés :

$$\phi' = \int (\omega_0 + \Delta E_e(t) + n\omega_L) dt \quad (1-4.46)$$

$$\phi'' = \int (\Delta E_g(t) + (n+1)\omega_L) dt \quad (1-4.47)$$

($\Delta E_e(t)$ et $\Delta E_g(t)$ sont les déplacements des états e et g lors de la collision).

Ces deux déphasages étant différents, $|\overline{1, n}\rangle$ a une projection non nulle sur l'état propre

$$|2, n\rangle = -\sin\theta |e, n\rangle + \cos\theta |g, n+1\rangle \quad (1-4.48)$$

qui vaut (d'après 1-4.45)

$$\langle 2, n | \overline{|1, n\rangle} = \cos\theta \sin\theta (\exp(-i\phi'') - \exp(-i\phi')) \quad (1-4.49)$$

Il y a donc une certaine probabilité de transfert de l'état $|1, n\rangle$ vers l'état $|2, n\rangle$

$$|S_{21}|^2 = |\langle 2, n | \overline{|1, n\rangle}|^2 = 2 \cos^2\theta \sin^2\theta (1 - \cos(\phi' - \phi'')) \quad (1-4.50)$$

Or d'après (1-4.46) et (1-4.47)

$$\phi' - \phi'' = \int (\Delta E_e(t) - \Delta E_g(t) - \delta) dt \quad (1-4.51)$$

Comme on a supposé $\delta\tau_c \ll 1$ on peut négliger le terme δ qui apparaît dans 1-4.51 et l'on obtient alors

$$\phi' - \phi'' = \phi \quad (1-4.52)$$

où ϕ est le déphasage du dipole atomique en l'absence d'irradiation laser (voir eq. 1-4.2). Si l'on somme maintenant sur toutes les collisions, on obtient

$$\begin{aligned} w = \langle |S_{21}|^2 \rangle &= 2 \cos^2\theta \sin^2\theta \langle 1 - \cos\phi \rangle \\ &= 2\gamma \cos^2\theta \sin^2\theta \end{aligned} \quad (1-4.53)$$

(le symbole $\langle \rangle$ de moyenne sur les collisions est défini par l'équation 1-4.4 et $\gamma = \langle 1 - \cos\phi \rangle$ d'après 1-4.3)

On a donc pu exprimer le taux de redistribution w en fonction de γ . La démonstration permet aussi de comprendre comment la collision qui est élastique en l'absence d'irradiation (provoquant seulement un déphasage du dipole) induit des transitions inélastiques entre niveaux habillés (déphasages différents ϕ' et ϕ'' pour les deux états découplés qui apparaissent dans le développement 1-4.45 de $|\overline{1, n}\rangle$).

On peut par un raisonnement analogue exprimer κ et ξ en fonction de γ et η . Il faut pour cela étudier l'évolution d'une cohérence de l'atome habillé lors de la collision. Avant la collision

$$\sigma = \langle 1, n | \sigma | 2, n \rangle |1, n\rangle \langle 2, n| + \dots \quad (1-4.54)$$

(on ne s'intéresse pas aux autres termes). Après la collision

$$\bar{\sigma} = \langle 1, n | \sigma | 2, n \rangle \overline{| 1, n \rangle} \langle \overline{2, n} | + \dots$$

$$\langle 1, n | \bar{\sigma} | 2, n \rangle = \langle 1, n | \sigma | 2, n \rangle \langle 1, n | \overline{| 1, n \rangle} \langle \overline{2, n} | 2, n \rangle + \dots \quad (1-4.55)$$

(les termes représentés par des pointillés donnent les couplages non séculaires ; on peut donc effectivement les ignorer).

La variation de la cohérence due à la collision s'écrit

$$\langle 1, n | (\bar{\sigma} - \sigma) | 2, n \rangle = - (1 - \langle 1, n | \overline{| 1, n \rangle} \langle \overline{2, n} | 2, n \rangle) \langle 1, n | \sigma | 2, n \rangle \quad (1-4.56)$$

et on obtient en sommant sur les collisions

$$\kappa + i\xi = \langle (1 - \langle 1, n | \overline{| 1, n \rangle} \langle \overline{2, n} | 2, n \rangle) \rangle \quad (1-4.57)$$

On calcule alors aisément

$$\begin{aligned} \langle 1, n | \overline{| 1, n \rangle} &= \cos^2 \theta \exp(-i\phi') + \sin^2 \theta \exp(-i\phi'') \\ \langle \overline{2, n} | 2, n \rangle &= \sin^2 \theta \exp(i\phi') + \cos^2 \theta \exp(i\phi'') \end{aligned} \quad (1-4.58)$$

$$1 - \langle 1, n | \overline{| 1, n \rangle} \langle \overline{2, n} | 2, n \rangle = \cos^4 \theta (1 - \exp(-i\phi)) + \sin^4 \theta (1 - \exp(i\phi)) \quad (1-4.59)$$

$$\kappa + i\xi = \cos^4 \theta (\gamma + i\eta) + \sin^4 \theta (\gamma - i\eta) \quad (1-4.60)$$

(on a utilisé $\phi = \phi' - \phi''$ (eq. 1-4.52) et $\gamma + i\eta = \langle 1 - \exp(-i\phi) \rangle$ (eq. 1-4.3))

Remarque :

Dans le calcul ci-dessus, nous aurions pu raisonner en représentation d'interaction (comme nous l'avons fait dans le cas général en utilisant la matrice S ; voir § I-4.2) . Mais ici les conditions $\delta\tau_c \ll 1$ et $\omega_1 \tau_c \ll 1$ impliquent $\Omega \tau_c \ll 1$ et on peut donc oublier l'évolution propre de la cohérence pendant le temps de collision.

Caractéristiques de la fluorescence dans le régime d'impact

En reportant les valeurs de w , κ et ξ , que l'on vient de trouver dans les expressions générales du paragraphe précédent, on obtient les caractéristiques de la fluorescence dans le régime d'impact. Nous donnons dans le tableau ci-dessous, l'intensité I de la fluorescence, les poids et largeurs

des raies du spectre et le déplacement collisionnel ξ des raies latérales

$$I = \Gamma(\Gamma+2\gamma) \cos^2\theta \sin^2\theta / (\Gamma(\cos^4\theta + \sin^4\theta) + 4\gamma \cos^2\theta \sin^2\theta) \quad (1-4.61)$$

$$= \frac{\Gamma}{2} (\Gamma + 2\gamma) \omega_1^2 / ((\Gamma+2\gamma) \omega_1^2 + 2\Gamma\delta^2)$$

$$I(\omega_L + \Omega) = \Gamma \cos^4\theta \sin^2\theta (\Gamma \sin^2\theta + 2\gamma \cos^2\theta) / (\Gamma(\cos^4\theta + \sin^4\theta) + 4\gamma \cos^2\theta \sin^2\theta) \quad (1-4.62)$$

$$= \frac{\Gamma}{8} \omega_1^2 (\Gamma \omega_1^2 + 2\gamma (\Omega - \delta)^2) / [\Omega^2 (\Gamma(\Omega^2 + \delta^2) + 2\gamma \omega_1^2)]$$

(on obtient $I(\omega_L - \Omega)$ en échangeant $\cos\theta$ et $\sin\theta$ dans la première ligne de 1-4.62 ou en remplaçant $\Omega - \delta$ par $\Omega + \delta$ au numérateur dans la deuxième ligne ; on rappelle que $\Omega^2 = \omega_1^2 + \delta^2$)

$$I(\omega_L) = \Gamma \cos^2\theta \sin^2\theta \quad (1-4.63)$$

$$= \Gamma \omega_1^2 / 4(\omega_1^2 + \delta^2)$$

$$I_{e\ell} = \Gamma \cos^2\theta \sin^2\theta \Gamma^2 \cos^2 2\theta / (\Gamma(\cos^4\theta + \sin^4\theta) + 4\gamma \cos^2\theta \sin^2\theta)^2 \quad (1-4.64)$$

$$= \Gamma^3 \omega_1^2 \delta^2 / ((\Gamma+2\gamma) \omega_1^2 + 2\Gamma\delta^2)^2$$

$$L(\omega_L \pm \Omega) = \Gamma(1 + 2\cos^2\theta \sin^2\theta) + 2\gamma(\cos^4\theta + \sin^4\theta) \quad (1-4.65)$$

$$= (\Gamma(3\omega_1^2 + 2\delta^2) + 2\gamma(\omega_1^2 + 2\delta^2)) / 2(\omega_1^2 + \delta^2)$$

$$L_{inel}(\omega_L) = 2(\Gamma(\cos^4\theta + \sin^4\theta) + 4\gamma \cos^2\theta \sin^2\theta) \quad (1-4.66)$$

$$= (\Gamma(\omega_1^2 + 2\delta^2) + 2\gamma \omega_1^2) / (\omega_1^2 + \delta^2)$$

$$\xi = \eta \cos 2\theta \quad (1-4.67)$$

$$= -\eta \delta / \Omega$$

1-4.6 La limite perturbatrice

Dans ce dernier paragraphe; nous discutons la forme que prennent nos résultats dans le cas où l'on peut représenter perturbativement la fluorescence assistée par collisions (Fig 1-4.2) c'est-à-dire à la limite perturbative

$$\omega_1 \ll \delta \quad (1-4.68)$$

Dans un premier temps, nous discutons la limite perturbative dans le régime d'impact ce qui correspond aux conditions

$$\omega_1 \tau_c \ll \delta \tau_c \ll 1 \quad (1-4.69)$$

Nous voyons ensuite comment les résultats sont modifiés lorsque le désaccord devient suffisamment grand pour que l'on sorte du régime d'impact :

$$\omega_1 \tau_c \ll 1 < \delta \tau_c \quad (1-4.70)$$

La limite perturbative du régime d'impact

On rappelle les poids des trois raies obtenus en l'absence de collisions (voir § 1-3.7) :

$$I(\omega_L) = \Gamma \epsilon^2$$

$$I(\omega_0) = I(2\omega_L - \omega_0) = \Gamma \epsilon^4 \quad (1-4.71)$$

(on rappelle que $\epsilon = \omega_1 / 2\delta$) .

Ces résultats s'interprètent très bien par l'étude de la cascade de l'atome habillé constituée d'une suite d'émissions de photons Rayleigh (Fig 1-4.3a) et de couples de photons $2\omega_L - \omega_0$ et ω_0 (Fig 1-4.3b)

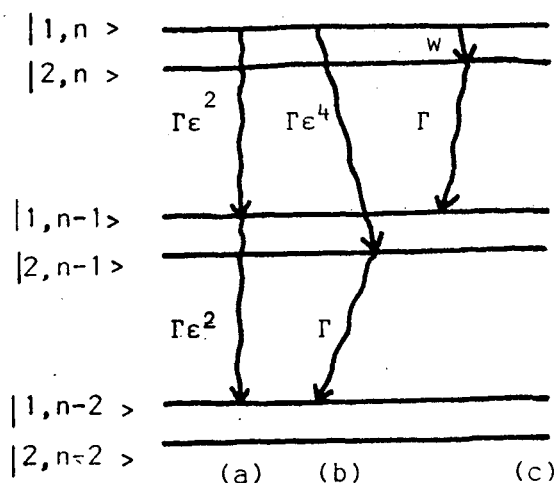


Figure 1-4.3 : La cascade de l'atome habillé à la limite perturbative. La colonne (c) correspond à l'effet des collisions

On peut maintenant voir comment ces résultats sont modifiés par les collisions. Il suffit d'appliquer les résultats du paragraphe précédent (§ 1-4.5) avec $\omega_1 \ll \delta$.

On obtient :

$$w = \gamma \omega_1^2 / 2\delta^2 = 2\gamma\epsilon^2 \quad (1-4.72)$$

$$\kappa = \gamma \quad (1-4.73)$$

$$\xi = -\eta \quad (1-4.74)$$

(comme dans le § 1-3.7 les résultats sont écrits pour $\delta > 0$; on aurait $\xi = \eta$ pour $\delta < 0$).

L'effet le plus important des collisions est de provoquer des transitions des niveaux les plus peuplés $|1, n\rangle$ vers les niveaux les moins peuplés $|2, n\rangle$ (Fig 1-4.3c). Après une telle collision, l'atome habillé passe de $|2, n\rangle$ à $|1, n-1\rangle$ en émettant un photon ω_0 (taux de transition Γ beaucoup plus important que les autres)

Le poids de la raie de fréquence ω_0 est donc

$$I(\omega_0) = w = 2\gamma\epsilon^2 \quad (1-4.75)$$

(puisque toute transition $|1, n\rangle \rightarrow |2, n\rangle$ est suivie de l'émission d'un photon ω_0). Ce poids est beaucoup augmenté par les collisions : $2\gamma\epsilon^2$ au lieu de $\Gamma\epsilon^4$ (il est proportionnel à l'intensité du laser et non plus à son carré). Par contre les poids des deux autres raies ne sont pas du tout modifiés par les collisions et restent déterminés par les processus radiatifs :

$$I(\omega_L) = \Gamma\epsilon^2 \quad (1-4.76)$$

$$I(2\omega_L - \omega_0) = \Gamma\epsilon^4$$

La dissymétrie du spectre est donc particulièrement marquée à la limite perturbative (Fig 1-4.4)

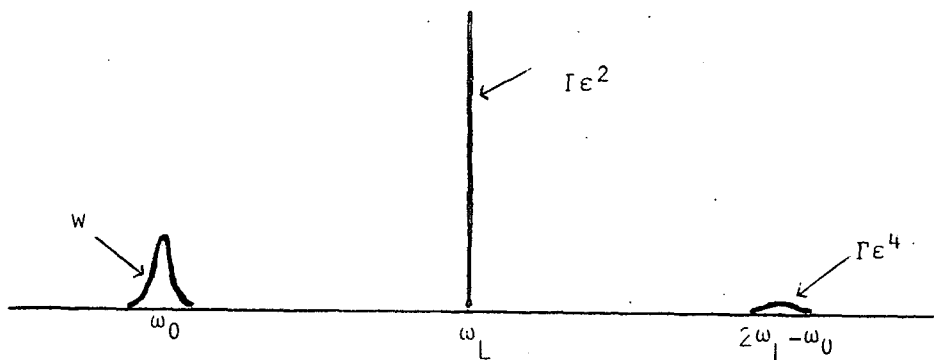


Figure 1-4.4 : Le triplet de fluorescence à la limite perturbative ($\omega_1 \ll \delta$) en présence de collisions ($w = 2\gamma\epsilon^2$ dans le régime d'impact)

La limite perturbative hors du régime d'impact

Nous voulons maintenant savoir ce qui change dans les résultats précédents lorsque la condition $\delta\tau_c \ll 1$ n'est plus vérifiée.

Dans ce but, nous reprenons la démonstration qui nous a permis d'établir les expressions de w , κ et ξ dans le régime d'impact (§ 1-4.5) ; à la limite perturbative, l'état $|1, n\rangle$ s'écrit (voir § 1-3.7) :

$$|1, n\rangle = |g, n+1\rangle + \epsilon |e, n\rangle \quad (1-4.77)$$

Si l'on néglige les transitions entre les deux états découplés pendant le temps de collision ($\omega_1\tau_c \ll 1$), l'effet de la collision est seulement de déphaser de façon différente les deux états découplés

$$|\overline{1, n}\rangle = \exp(-i\phi'') |g, n+1\rangle + \epsilon \exp(-i\phi') |e, n\rangle \quad (1-4.78)$$

On obtient la projection de l'état final sur $|2, n\rangle$

$$|2, n\rangle = -\epsilon |g, n+1\rangle + |e, n\rangle \quad (1-4.79)$$

$$\langle 2, n | \overline{1, n} \rangle = \epsilon (\exp(-i\phi') - \exp(-i\phi'')) \quad (1-4.80)$$

Les états propres étant très peu différents des états découplés, le transfert entre les deux états propres provoqué par le déphasage différent des deux états découplés est très faible et le raisonnement ci-dessus n'est pas cohérent : on obtient un résultat en $\epsilon = \omega_1 / \delta$ alors que l'on a négligé au départ des termes en $\omega_1\tau_c$ qui sont du même ordre ou plus grands puisque

$$\delta\tau_c > 1 \rightarrow \omega_1 / \delta < \omega_1\tau_c. \quad (1-4.81)$$

De plus, nous avons pu dans le régime d'impact identifier $\phi' - \phi''$ avec le déphasage ϕ du dipole en l'absence d'irradiation en utilisant la condition $\delta\tau_c \ll 1$ (eq. 1-4.51). Une telle identification n'est plus possible ici.

Pour faire un calcul correct de w , il faut tenir compte des deux points ci-dessus. On peut effectivement faire un calcul perturbatif en ω_1 qui traite correctement les termes en ω_1/δ et en $\omega_1\tau_c$. Si le désaccord δ est fixé, w est alors proportionnel à ω_1^2 (à l'ordre le plus bas en ω_1) et on peut l'écrire sous la forme :

$$w = g(\delta) \omega_1^2 / 2\delta^2 \quad (1-4.82)$$

ce qui définit la fonction $g(\delta)$. Les résultats précédents montrent que $g(\delta)$ est égal à γ dans le régime d'impact (c'est-à-dire pour $\delta\tau_c \ll 1$).

Le raisonnement que nous avons fait pour déduire le poids de la raie ω_0 du taux de redistribution w reste entièrement valable et on obtient donc

$$I(\omega_0) = w = g(\delta) \omega_1^2 / 2\delta^2 \quad (1-4.83)$$

Calculons maintenant κ et ξ en étudiant l'évolution de la cohérence $\langle 1, n | \sigma | 2, n \rangle$ pendant la collision. Ce calcul est beaucoup plus simple que celui de w . En effet, si l'on néglige des termes en ω_1/δ alors

$$\langle 1, n | \sigma | 2, n \rangle = \langle g, n+1 | \sigma | e, n \rangle \quad (1-4.84)$$

Si l'on néglige maintenant des termes en $\omega_1\tau_c$, le seul effet de la collision est de déphaser de façon différente les deux niveaux découplés

$$\langle 1, n | \sigma | 2, n \rangle = \exp i(\phi' - \phi'') \langle 1, n | \sigma | 2, n \rangle \quad (1-4.85)$$

avec :

$$\phi' - \phi'' = \int (\Delta E_e(t) - \Delta E_g(t) - \delta) dt \quad (1-4.86)$$

Le terme δ représente simplement l'évolution libre de la cohérence ($\Omega = \delta$ puisqu'on néglige les termes en ω_1/δ) et le déphasage supplémentaire dû à la collision est donc identique au déphasage ϕ du dipole en l'absence d'irradiation. On en déduit :

$$\kappa + i\xi = \langle 1 - \exp(i\phi) \rangle = \gamma - i\eta \quad (1-4.87)$$

et on trouve ainsi le même résultat que dans la limite d'impact (eq. 1-4.73 et 1-4.74). Autrement dit, lorsque $\omega_1\tau_c \ll 1$, les expressions de κ et ξ sont les mêmes dans les deux cas $\delta\tau_c \ll 1$ et $\delta\tau_c > 1$ alors que l'expression de w ne reste pas la même dans ces deux cas (eq. 1-4.72 et 1-4.82)

Absorption des photons laser. Interprétation de $g(\delta)$

Le poids de la raie Rayleigh et le poids de la raie de redistribution (à la fréquence atomique ω_0) sont tous les deux proportionnels à ω_1^2

$$I(\omega_L) = \Gamma \omega_1^2 / 4\delta^2 \quad (1-4.88)$$

$$I(\omega_0) = g(\delta) \omega_1^2 / 2\delta^2 \quad (1-4.89)$$

(le poids de la raie $2\omega_L - \omega_0$ est beaucoup plus petit, en ω_1^4 / δ^4). Le nombre total de photons laser absorbés est égal au nombre total de photons de fluorescence

$$I = I(\omega_L) + I(\omega_0) = (\Gamma + 2g(\delta)) \omega_1^2 / 4\delta^2. \quad (1-4.90)$$

Il est donc lui aussi proportionnel à l'intensité laser et l'on peut définir une section efficace d'absorption $\sigma_A(\delta)$.

$$\sigma_A(\delta) = \frac{3\lambda^2}{2\pi} \Gamma(\Gamma + 2g(\delta)) / 4\delta^2 \quad (1-4.91)$$

Dans le régime d'impact, $g(\delta)$ est égal à γ et la variation de $\sigma_A(\delta)$ est en δ^{-2} . Autrement dit, l'absorption est lorentzienne dans le régime d'impact (on a utilisé l'approximation séculaire $\Gamma, \gamma \ll \delta$, ce qui nous empêche d'obtenir $\sigma_A(\delta)$ au centre de la raie ; un calcul sans l'approximation séculaire donne pour largeur totale à mi-hauteur de la lorentzienne $\Gamma + 2\gamma$).

Par contre, hors du régime d'impact, $g(\delta)$ varie avec δ et le profil d'absorption n'est plus lorentzien. Le problème du calcul de $g(\delta)$ est donc identique au problème bien connu du calcul des effets non markoviens dans les ailes du profil d'absorption ("far wing absorption" Fig 1-4.5) [Cc 2] .

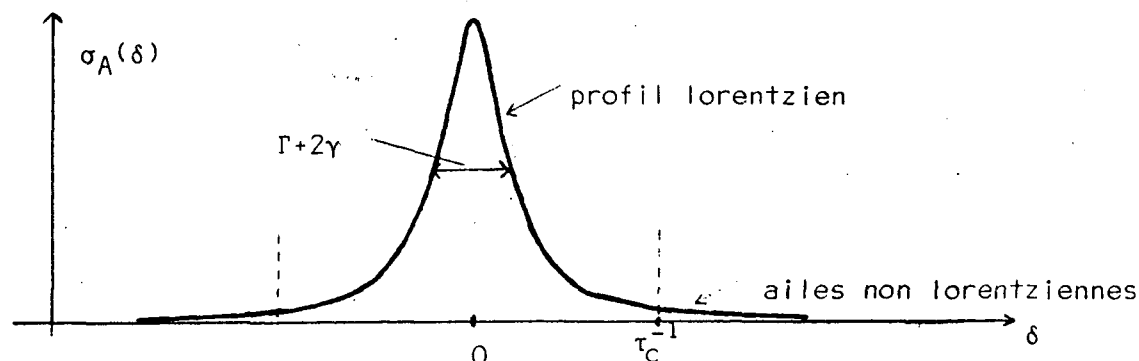


Figure 1-4.5 : Section efficace d'absorption σ_A en fonction du désaccord $\delta = \omega_L - \omega_0$ (la différence entre γ et τ_c^{-1} est dans la réalité beaucoup plus grande que sur la figure).

C H A P I T R E 1-5

CONDITIONS DE VALIDITE DE L'EQUATION PILOTE DE L'ATOME HABILLE ET CONDITIONS DE VALIDITE DES EQUATIONS DE BLOCH OPTIQUES

La relaxation de l'atome habillé est due au couplage de l'atome avec un système perturbateur : les modes vides du rayonnement pour la relaxation radiative ou les atomes perturbateurs pour la relaxation collisionnelle. Une caractéristique importante de ce couplage est son temps de corrélation τ_c : temps de corrélation de l'émission spontanée ou temps de collision. Nous abordons dans ce chapitre deux questions qui sont étroitement reliées au fait que ce temps de corrélation n'est pas nul :

- (i) nous n'avons pas jusqu'à présent tenu compte de ce temps de corrélation lorsque nous avons déduit les signaux de fluorescence de l'EPAH (équation pilote de l'atome habillé) ; quelles sont les limites de validité de notre méthode dues au fait que τ_c n'est pas nul ?
- (ii) Quelles sont les conditions pour que les EBO (équations de Bloch optiques) permettent de calculer les signaux de fluorescence ?

On discute d'abord ces deux problèmes de manière générale (§ 1-5.1) puis on applique les résultats obtenus à la relaxation radiative (§ 1-5.2) puis à la relaxation collisionnelle (§ 1-5.3). On récapitule enfin les conditions de validité liées aux diverses approximations utilisées dans la méthode de l'atome habillé (§ 1-5.4)

1-5.1 Discussion générale

La condition pour que l'on puisse d'écrire la relaxation de l'atome habillé par une équation pilote est que le temps de corrélation τ_c du couplage avec le système perturbateur soit beaucoup plus court que le temps de relaxation

$$\tau_c \ll T_R \quad (1-5.1)$$

Par ailleurs, si le couplage atome-laser n'a pas le temps de se faire sentir pendant le temps de corrélation τ_c du couplage atome-perturbateur

alors on pourra considérer que les photons laser restent "spectateurs" pendant le temps τ_c et ne modifient pas les termes de relaxation. Ce raisonnement nous donne donc la condition fondamentale pour que les termes de relaxation soient indépendants de l'irradiation laser

$$\omega_1 \tau_c \ll 1 \quad (1-5.2)$$

Cette condition est analogue à celle qui intervient dans d'autres problèmes bien connus comme par exemple celui de la collision d'un perturbateur P contre un atome possédant un spin électronique $\vec{S}$ et un spin nucléaire $\vec{I}$ couplés par une interaction hyperfine $a\vec{S} \cdot \vec{I}$. L'interaction A-P n'agit en général que sur $\vec{S}$ et non sur $\vec{I}$. Si $a\tau_c \ll 1$, seul $\vec{S}$ est affecté pendant la collision alors que $\vec{I}$ reste figé. Bien sur, $\vec{S}$ et $\vec{I}$ se recouplent et évoluent entre deux collisions. On obtient donc l'évolution de $\vec{S}$ en ajoutant deux vitesses de variation, l'une relative au couplage avec $\vec{I}$ calculée indépendamment des collisions et l'autre relative aux collisions et calculée indépendamment du couplage avec $\vec{I}$.

Si la condition (1-5.2) est réalisée, on pourra considérer que l'atome est soumis à deux phénomènes indépendants, d'une part l'interaction avec le laser et d'autre part la relaxation, et on pourra décrire son évolution par les EBO obtenues en ajoutant indépendamment les vitesses de variation dues à ces deux couplages.

La condition (1-5.2) est plus sévère que la condition (1-5.1) puisque ω_1 est plus grand que T_R^{-1} (nous supposons les raies bien séparées). Un raisonnement plus approfondi va nous montrer qu'une condition encore plus sévère que (1-5.2) doit être satisfaite pour qu'on puisse déduire les signaux de fluorescence des EBO.

Pour écrire une équation pilote (EPAH ou EBO), nous avons moyenné l'évolution de la matrice densité sur un temps Δt tel que

$$\tau_c \ll \Delta t \ll T_R \quad (1-5.3)$$

("coarse grained evolution" voir § 1-4.2). Nous avons ainsi négligé la dynamique de la matrice densité sur des temps inférieurs à Δt (donc correspondant à des fréquences supérieures à Δt^{-1}). Cette approximation conduit à des conditions

de validité très différentes pour les EBO ou l'EPAH. En effet, en l'absence d'irradiation laser et de relaxation, la seule fréquence d'émission de l'atome nu serait ω_0 . L'émission à la fréquence ω en présence d'irradiation laser et de relaxation ne peut donc être déduite des EBO que si

$$|\omega - \omega_0| < \Delta t^{-1} \ll \tau_c^{-1} \quad (1-5.4)$$

Par contre, si l'on utilise la méthode de l'atome habillé, on commence par diagonaliser l'interaction atome-laser et par obtenir les fréquences d'émission du système en l'absence de relaxation $\omega_L + \alpha\Omega$ ($\alpha = 0, \pm 1$). L'équation pilote permet alors de calculer le spectre dans trois intervalles de largeur Δt^{-1} autour des trois fréquences $\omega_L + \alpha\Omega$

$$|\omega - (\omega_L + \alpha\Omega)| < \Delta t^{-1} \ll \tau_c^{-1} \quad (1-5.5)$$

La largeur des raies étant τ_R^{-1} ($\ll \Delta t^{-1}$), on obtient avec la méthode de l'atome habillé des résultats exacts pour les caractéristiques essentielles de la fluorescence même si on ne peut prédire la forme précise des ailes lointaines des trois raies de réémission, forme qui dépend de la dynamique de la collision et pas seulement de la matrice de collision.

Par contre, on ne peut déduire les caractéristiques de la fluorescence des EBO que si la redistribution en fréquence se fait dans l'intervalle défini par la condition (1-5.4) c'est-à-dire si les trois composantes du triplet sont dans cet intervalle. Ceci correspond à la condition

$$\Omega\tau_c \ll 1 \quad (1-5.6)$$

plus sévère que (1-5.2) puisqu'on peut l'écrire

$$\omega_1\tau_c \ll 1 \quad \text{et} \quad \delta\tau_c \ll 1 \quad (1-5.7)$$

La conclusion de ce paragraphe est donc que la seule condition pour que l'on puisse déduire les signaux de fluorescence de l'EPAH est la condition (1-5.1) alors que les deux conditions (1-5.7) doivent en plus être satisfaites pour que l'on puisse déduire ces signaux des EBO.

1-5.2 Retour sur la relaxation radiative

Revenons maintenant à la relaxation radiative. Le temps de corrélation τ_c^{rad} de l'émission spontanée est de l'ordre d'une période optique

$$\tau_c^{\text{rad}} \sim \omega_0^{-1} \quad (1-5.8)$$

Les conditions (1-5.7) s'écrivent donc

$$\omega_1 \ll \omega_0 \quad \text{et} \quad \delta \ll \omega_0 \quad (1-5.9)$$

Elles sont identiques aux conditions qui nous ont permis de représenter l'atome par un système à deux niveaux. Ceci explique que l'on ait obtenu une équation pilote où la relaxation radiative est indépendante du couplage atome-laser (voir § 1-2.1). Ceci explique aussi que l'on puisse traiter le problème du triplet de fluorescence à partir des EBO [Ab 6] .

On peut arriver au même résultat en raisonnant non pas sur le temps de corrélation τ_c^{rad} des fluctuations du vide mais sur leur spectre en fréquence. En effet, considérer que τ_c^{rad} est nul est équivalent à considérer que le spectre des fluctuations du vide est indépendant de la fréquence et tenir compte de τ_c^{rad} est donc équivalent à tenir compte de la dépendance en ω^3 du spectre (Fig 1-5.1).

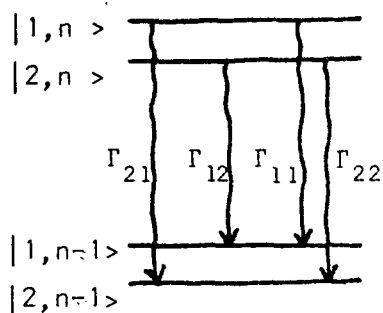


Figure 1-5.1 : En toute rigueur, les taux de transition ont pour valeurs

$$\begin{aligned} \Gamma_{21} &\sim (\omega_L + \Omega)^3 |d_{21}|^2 & \Gamma_{12} &\sim (\omega_L - \Omega)^3 |d_{12}|^2 \\ \Gamma_{11} &\sim \omega_L^3 |d_{11}|^2 & \Gamma_{22} &\sim \omega_L^3 |d_{22}|^2 \end{aligned}$$

Si les conditions (1-5.9) sont vérifiées, on peut remplacer $(\omega_L + \Omega)^3$, $(\omega_L - \Omega)^3$ et ω_L^3 par ω_0^3 et on retrouve alors les taux de transitions obtenus dans le § 1-2.1 .

Remarque :

Nous n'avons pas du tout parlé jusqu'à maintenant du déplacement des niveaux de l'atome habillé sous l'effet du couplage avec les modes vides (Lamb shift). Nous avons supposé en effet qu'il était inclus dans la définition de la fréquence atomique ω_0 . Nous n'avons pu le faire que parce que l'effet du couplage avec les modes vides est le même qu'en l'absence d'irradiation laser (conditions I-5.9 satisfaites)

1-5.3 Retour sur la relaxation collisionnelle

Le temps de corrélation τ_c associé à la relaxation collisionnelle est le temps de collision ($\tau_c \sim 10^{-12}$ s) beaucoup plus long que le temps de corrélation de l'émission spontanée ($\omega_0^{-1} < 10^{-15}$ s). Les conditions (1-5.7) délimitent donc deux régions correspondant à des situations physiques importantes : la première région dans laquelle les conditions (1-5.7) sont vérifiées correspond au régime d'impact que nous avons déjà étudié (§ 1-4). Hors du régime d'impact par contre les conditions (1-5.7) ne sont plus vérifiées et on ne peut plus calculer les signaux à partir des EBO.

Le régime d'impact

Dans le régime d'impact, on peut calculer les signaux de fluorescence à partir des EBO dans lesquelles la relaxation collisionnelle est décrite par les deux paramètres γ et η . Ceci explique pourquoi on a pu dans ce cas exprimer w , κ et ξ en fonction de γ et η (§ 1-4.5)

On sait en effet écrire l'effet de la relaxation collisionnelle dans la base des états découplés : EBO pour la partie atomique, les photons laser restant spectateurs. On peut alors en déduire l'équation pilote dans la base couplée par un simple changement de base. Négligeant les termes couplant des éléments de matrice évoluant à des fréquences différentes (approximation séculaire), on obtient finalement les paramètres w , κ et ξ en fonction de γ , η et de l'angle θ caractérisant le changement de base. Ce calcul (qui est fait dans l'appendice A2) permet de retrouver d'une manière différente les résultats du § 1-4.5.

Remarquons qu'il existe un troisième moyen pour comprendre la valeur du déplacement collisionnel ξ des raies latérales dans le régime d'impact. En effet, ξ peut être calculé en incluant le déplacement collisionnel η en l'absence d'irradiation dans la fréquence atomique ω_0 (de la même façon que le Lamb shift). Le désaccord passe alors de la valeur $\delta = \omega_L - \omega_0$ à la nouvelle valeur

$$\bar{\delta} = \omega_L - (\omega_0 + \eta) = \delta - \eta \quad (1-5.10)$$

L'écart Ω entre les deux niveaux d'une multiplicité devient

$$\begin{aligned} \bar{\Omega} &= (\omega_1^2 + (\delta - \eta)^2)^{1/2} \\ &= \Omega - \delta\eta/\Omega \end{aligned} \quad (1-5.11)$$

(on a négligé les termes d'ordre supérieur en η) . On retrouve ainsi le résultat du paragraphe § 1-4.5.

La relaxation collisionnelle hors du régime d'impact

La discussion générale du § 1-5.1 montre que l'on ne peut plus dériver le spectre de fluorescence des EBO hors du régime d'impact, autrement dit lorsque

$$\omega_1 \tau_C > 1 \quad \text{ou} \quad \delta \tau_C > 1 \quad (1-5.12)$$

On comprend bien pourquoi les résultats du régime d'impact ne sont plus valables lorsque

$$\omega_1 \tau_C > 1 \quad (1-5.13)$$

L'effet du couplage atome-laser est alors important pendant le temps de collision et la dynamique de la collision est modifiée par l'interaction atome laser (la matrice S qui ne dépendait pas de l'interaction avec le laser dans le régime d'impact est maintenant fonction de ω_1).

Il existe une autre situation qui est celle que nous avons étudiée au § 1-4.6 :

$$\omega_1 \tau_C \ll 1 < \delta \tau_C \quad (1-5.14)$$

L'effet du couplage atome laser pendant le temps de collision est alors faible ($\omega_1 \tau_C \ll 1$) mais il est du même ordre ou plus grand que l'autre infiniment petit ω_1 / δ intervenant dans le calcul de w et on ne peut donc pas le négliger.

Lorsque les conditions (1-5.14) sont satisfaites, on a obtenu (§ 1-4.6)

$$w = g(\delta) \omega_1^2 / 2\delta^2 \quad (1-5.15)$$

On peut généraliser cette expression en définissant une fonction $g(\omega_1, \delta)$ telle que

$$w = g(\omega_1, \delta) \frac{\omega_1^2}{2(\omega_1^2 + \delta^2)} \quad (1-5.16)$$

La comparaison de cette expression avec celle qui est valable dans le régime d'impact ($w = \gamma \omega_1^2 / 2(\omega_1^2 + \delta^2)$ eq. 1-4.53) conduit à deux conclusions

(i) $g(\omega_1, \delta)$ est égal à γ dans le régime d'impact

(ii) les populations stationnaires et les intensités des raies du spectre ne dépendent que du paramètre w (et pas de κ et ξ) et on obtient donc des expressions justes hors du régime d'impact en remplaçant simplement γ par $g(\omega_1, \delta)$ dans les expressions valables dans le régime d'impact.

Il pourrait donc être tentant de considérer $g(\omega_1, \delta)$ comme un "paramètre effectif" de relaxation remplaçant γ dans les EBO. On obtiendrait ainsi (voir eq. 1-4.53 et 1-4.60)

$$w = g(\omega_1, \delta) \frac{\omega_1^2}{2(\omega_1^2 + \delta^2)} \quad (1-5.17)$$

$$\kappa = g(\omega_1, \delta) (\omega_1^2 + 2\delta^2) / 2(\omega_1^2 + \delta^2) \quad (1-5.18)$$

Le premier résultat est juste ($g(\omega_1, \delta)$ a été défini pour cela) mais le second n'a aucune raison de l'être. On est même certain qu'il est faux lorsque $\omega_1 \tau_c \ll 1 \ll \delta \tau_c$ puisque ce résultat s'écrit alors $\kappa = g(\delta)$ alors que l'on a démontré dans le § 1-4.6 que $\kappa = \gamma$

Les EBO ne permettent donc pas, finalement, de calculer les signaux de fluorescence hors du régime d'impact même en remplaçant γ par un "paramètre effectif" $g(\omega_1, \delta)$. On peut se demander s'il est possible de définir des EBO généralisées tenant compte de l'effet de l'irradiation laser sur les collisions. La réponse est positive et elle est fournie par la méthode de l'atome habillé développée dans ce travail. On peut en effet écrire l'équation pilote de l'atome habillé à la seule condition $\tau_c \ll T_R$ (autrement dit $\gamma \tau_c \ll 1$). On peut alors définir une équation pilote réduite en "condensant" les multiplicités de l'atome habillé en une seule multiplicité fictive (voir la discussion du § 1-2.4). Lorsque les termes de relaxation sont les mêmes qu'en l'absence d'irradiation laser (condition $\Omega \tau_c \ll 1$), cette équation pilote réduite est identique aux EBO écrites dans la base couplée. On peut donc considérer que cette équation pilote réduite est la généralisation hors du

régime d'impact des EBO (écrites dans la base couplée).

On peut insister sur le fait que ce n'est pas la description du champ laser par une onde classique qui est en cause (les termes d'interaction atome-laser sont les mêmes dans l'équation pilote réduite et dans les EBO) mais la description de la relaxation qui n'est plus indépendante du couplage atome-laser.

1-5.4 Récapitulation des approximations

Une première série d'approximations (faites dans le chapitre 1-1) concerne la description du champ laser (approximation quasiclassique), l'interaction entre l'atome et le champ (approximation dipolaire électrique) et les couplages non résonnants que nous avons négligés (représentation de l'atome par un système à deux niveaux, approximation du champ tournant). Ces approximations sont très bien vérifiées dans les conditions dans lesquelles nous nous sommes placés.

Une deuxième série d'approximations concerne la description des collisions (§ 1-4). Pour étudier l'effet des collisions sur les signaux de fluorescence, nous avons en effet utilisé un modèle simple de collisions. On peut lui reprocher de ne pas tenir compte de la redistribution de polarisation ni des collisions de changement de vitesse. Notons qu'il serait en fait tout à fait possible de traiter ces deux effets par la méthode de l'atome habillé.

Les approximations discutées jusqu'à maintenant sont des approximations "générales" communes à la plupart des méthodes et nous ne revenons pas sur leurs conditions de validité qui sont bien connues. Il y a par contre deux approximations spécifiques de la méthode que nous avons employée et dont nous voulons souligner les conditions de validité.

La première est liée à la description de la relaxation de l'atome habillé par une équation pilote. Nous l'avons discutée dans le paragraphe 1-5.1. Rappelons que la condition fondamentale de validité de cette méthode est $\gamma\tau_c \ll 1$ mais que, même quand cette condition est réalisée, on ne peut déduire le spectre de l'équation pilote que dans trois intervalles centrés chacun sur une des raies et de largeur plus petite que τ_c^{-1} (condition 1-5.5).

La deuxième est l'approximation séculaire qui permet d'exprimer les positions, poids et largeurs des raies (et plus généralement tous les

signaux) en fonction des paramètres de relaxation séculaires seulement (taux de transition pour la relaxation radiative ; w , κ et ξ pour la relaxation collisionnelle). La condition fondamentale de validité de cette approximation est que les raies ne se recouvrent pas (écart Ω entre les raies beaucoup plus grand que la largeur des raies $\Omega \gg \Gamma, \gamma$). Mais même quand cette condition est réalisée, l'approximation séculaire ne permet pas de calculer le spectre pour toutes les valeurs de la fréquence de réémission. En effet, les couplages non séculaires que nous avons négligés introduisent des composantes de dispersion : quand on tient compte de ces composantes, une raie du spectre s'écrit [Ah 1]

$$S_{\alpha}(\omega) \sim \text{Re} (1 + i\epsilon_{\alpha}) / (L_{\alpha} - i\Delta\omega) \quad (1-5.19)$$

$$\sim [L_{\alpha} + \epsilon_{\alpha}\Delta\omega] / [L_{\alpha}^2 + (\Delta\omega)^2] \quad (1-5.20)$$

où $\Delta\omega = \omega - (\omega_L + \alpha\Omega)$, L_{α} est la largeur de la raie et ϵ_{α} le coefficient de la partie dispersive :

$$\epsilon_{\alpha} \sim \gamma / \Omega \quad (1-5.21)$$

(puisque ϵ_{α} est du aux couplages non séculaires). Si l'on étudie le centre de la raie (correspondant à $\Delta\omega \sim L_{\alpha}$) on retrouve que la composante dispersive a un effet négligeable. Si l'on étudie par contre ce qui se passe entre les raies du spectre, par exemple à une distance $\Delta\omega = \Omega/2$ du centre de la raie, alors la contribution séculaire est $L_{\alpha} / (\Delta\omega)^2 \sim L_{\alpha} / \Omega^2$ et la contribution non séculaire (partie dispersive) est $\epsilon_{\alpha} / \Delta\omega \sim \gamma / \Omega^2$. Les deux contributions sont donc du même ordre. Finalement, l'approximation séculaire ne permet de calculer le spectre que pour les fréquences ω telles que :

$$|\omega - (\omega_L + \alpha\Omega)| \ll \Omega \quad (1-5.22)$$

(c'est-à-dire lorsque le signal est important) mais elle ne permet pas de calculer le spectre entre les raies.

En conclusion de ce chapitre, il est intéressant de comparer les conditions de validité des deux dernières approximations en distinguant trois régions différentes selon la valeur de Ω (Fig. 1-5.2)

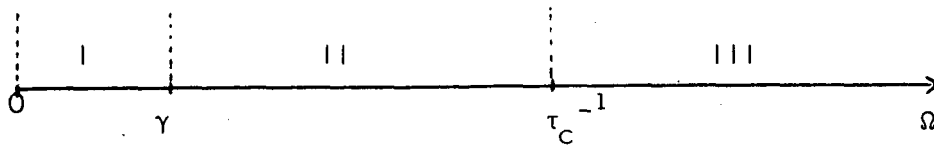


Figure 1-5.2 : Trois régions différentes pour le calcul du spectre

La région I correspond au cas des raies non séparées ($\Omega < \gamma$). Nous n'avons pas abordé ce cas dans ce travail parce qu'on ne peut faire alors l'approximation séculaire. Mais le calcul du spectre peut se faire sans difficulté puisque les EBO sont alors valables.

La région II correspond au régime d'impact (avec raies bien séparées $\gamma < \Omega < \tau_c^{-1}$). Dans ce cas, l'approximation séculaire permet d'exprimer en fonction des paramètres séculaires seulement les caractéristiques essentielles du spectre. On peut toutefois si nécessaire tenir compte des couplages non séculaires par exemple en calculant le spectre à partir des EBO. Le résultat obtenu est alors valable dans un intervalle total τ_c^{-1} (Fig 1-5.3)

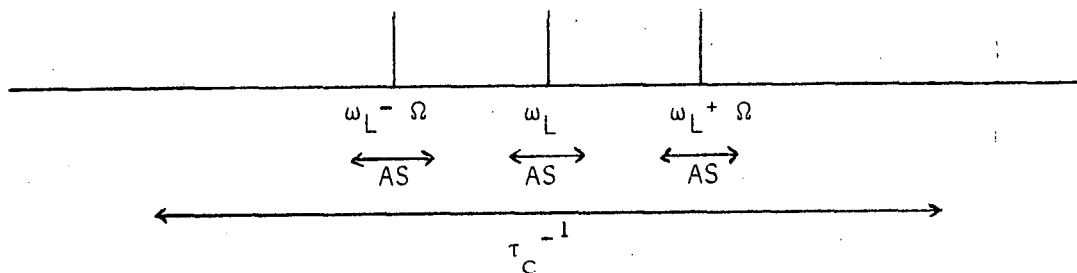


Figure 1-5.3 : Validité du calcul avec l'approximation séculaire (AS) ou sans approximation séculaire (τ_c^{-1}) dans le régime d'impact (région II).

Finalement la région III correspond au régime hors d'impact. L'équation pilote de l'atome habillé permet alors de calculer le spectre en fonction de w , κ et ξ . Le résultat est valable dans trois intervalles de largeur τ_c^{-1} (un pour chacune des raies Fig 1-5.4). Il est alors absolument inutile de tenir compte des couplages non séculaires qui ont un effet plus faible que les effets non markoviens

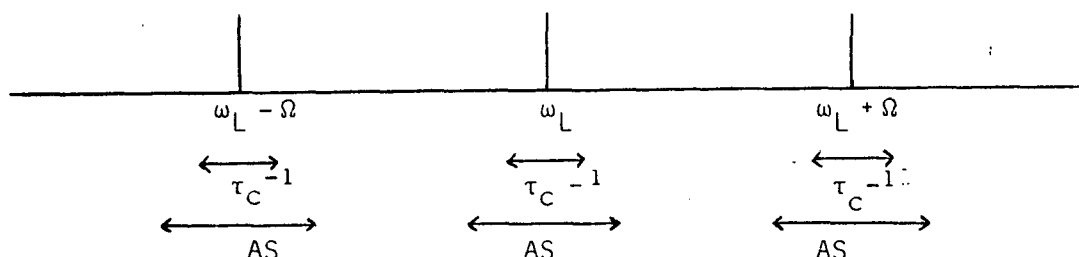


Figure 1-5.4 Situation hors du régime d'impact (région III).

C H A P I T R E 1-6

EXTENSION DE LA METHODE A L'ETUDE D'AUTRES PROBLEMES

Dans cette première partie, nous avons étudié le problème de la fluorescence d'un atome à deux niveaux soumis à une irradiation laser. Nous avons d'abord montré que la méthode de l'atome habillé permettait de comprendre immédiatement les principales caractéristiques qualitatives de la fluorescence (§ 1-1). En étudiant ensuite la relaxation de l'atome habillé, nous avons montré que l'on pouvait obtenir des expressions quantitatives pour les signaux de fluorescence et que ces expressions correspondaient à des images physiques simples (§ 1-2, 1-3, 1-4). Nous avons enfin discuté les conditions de validité de notre méthode et montré que ces conditions étaient plus larges que celles des équations de Bloch optiques (§ 1-5).

Avant de passer à la seconde partie où l'on va montrer que cette méthode est très bien adaptée aussi aux situations où l'effet Doppler joue un rôle important, nous voulons rappeler que dans l'étude d'autres problèmes, absorption d'un faisceau laser sonde, systèmes à plus de deux niveaux, l'atome habillé fournit aussi des résultats quantitatifs associés à des interprétations simples.

Absorption d'un faisceau laser sonde :

On considère comme précédemment un atome à deux niveaux g et e excité par un laser intense de fréquence ω_L . Au lieu d'étudier la fluorescence de cet atome, on mesure l'absorption d'un second faisceau laser de fréquence ω utilisé comme sonde et supposé suffisamment faible pour ne pas perturber l'état de l'atome [Af] .

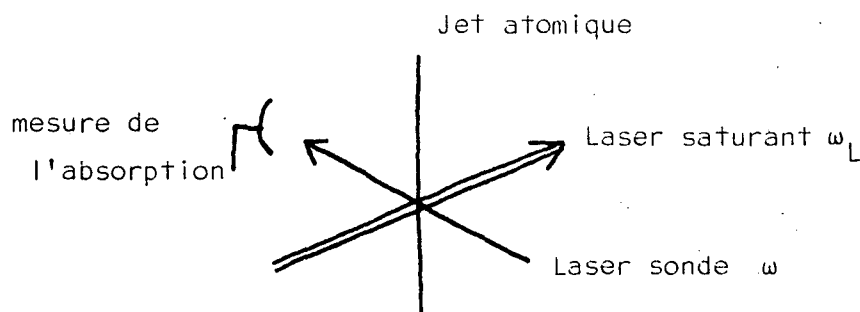


Figure 1-6.1 : Etude de l'absorption d'un faisceau laser sonde

Lorsqu'on fait varier la fréquence ω autour de la fréquence atomique ω_0 , on mesure en quelque sorte le spectre d'absorption de l'atome habillé.

On peut montrer [Ah 1] les résultats suivants :

(i) on obtient deux raies latérales en $\omega_L \pm \Omega$ dont les poids $I_a(\omega_L \pm \Omega)$ ont pour valeur

$$I_a(\omega_L + \Omega) = k_a (d_{21})^2 (\pi_2 - \pi_1) \quad (1-6.1)$$

$$I_a(\omega_L - \Omega) = k_a (d_{12})^2 (\pi_1 - \pi_2)$$

Ces poids sont déterminés par la différence entre les processus d'absorption et d'émission stimulée et sont donc proportionnels à la différence des populations des deux niveaux impliqués (alors que les poids d'émission spontanée dépendent seulement de la population du niveau du haut).

(ii) La raie centrale (en ω_L) n'apparaît pas puisqu'elle correspond à des transitions entre des niveaux ayant la même population (absorption et émission stimulée s'équilibrent).

(iii) Si par exemple π_2 est plus grand que π_1 , la composante de fréquence $\omega_L + \Omega$ est absorbante (Eq. 1-6.1 : $I_a(\omega_L + \Omega) > 0$ signifie que l'absorption l'emporte sur l'émission induite). Mais alors la composante de fréquence $\omega_L - \Omega$ est amplifiante (il y a une inversion de population entre les états habillés).

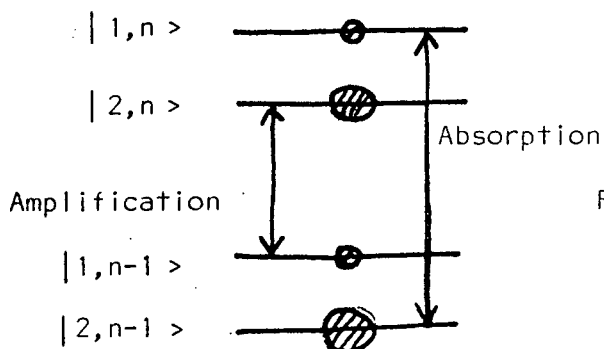


Figure 1-6.2 : Une composante est absorbante et l'autre amplifiante

(iiii) à résonance, les populations π_1 et π_2 sont égales et les deux composantes latérales disparaissent. Pour obtenir une amplification du faisceau sonde, il faut

donc que le laser soit désaccordé de la résonance atomique.

Atomes à plus de deux niveaux

Jusqu'à présent, nous avons toujours considéré un atome dont deux niveaux seulement (g et e) étaient couplés au laser intense (saturation d'un atome à deux niveaux). Or de nombreux problèmes physiques intéressants ne peuvent être réduits à des problèmes à deux niveaux. La méthode de l'atome habillé est très bien adaptée à l'étude de la saturation des systèmes à plusieurs niveaux [Ah] . Rappelons pour mémoire les problèmes que nous avons abordés par cette méthode :

- Effets de polarisation liés à la dégénérescence Zeeman des niveaux couplés par le laser : modification du spectre de fluorescence lorsqu'on excite les atomes avec une polarisation et qu'on observe la lumière réémise avec une autre [Ah 5] ; modification des signaux de corrélation de photons [Ae 1] .
- Modification de l'effet Raman dans un champ laser intense [Ah3] . Les résultats obtenus sont discutés dans la lettre reproduite en Annexe 1 (voir les pages suivantes).
- saturation simultanée de deux transitions atomiques ayant un niveau commun (situation fréquente dans les expériences d'excitation par échelon) [Ah 4]
- tentative d'interprétation des asymétries observées expérimentalement sur le triplet de fluorescence (calcul tenant compte de la structure hyperfine du niveau supérieur et du niveau inférieur de la raie D_2 du sodium [Ah 1]

A N N E X E I

=====

EFFET RAMAN SPONTANE

DANS UN CHAMP LASER INTENSE

*Communication au Troisième Congrès International sur
la Spectroscopie Laser (TICOLS), Jackson Lake Lodge, Wyoming,
U.S.A. , Juillet 1977.*

*Publié dans "Laser Spectroscopy III" ed. J.L. Hall et
J.L. Carlsten (Springer Verlag 1977) pages 195-204.*

SPONTANEOUS RAMAN EFFECT IN INTENSE LASER FIELDS

C. Cohen-Tannoudji and S. Reynaud
Ecole Normale Supérieure and Collège de France
24, rue Lhomond - 75231 Paris Cedex 05, FRANCE

1. Introduction

In this paper, we discuss, from a theoretical point of view, how spontaneous Raman effect is modified at very high laser intensities.

Up to now, intense field effects have been mainly investigated, both theoretically [1] and experimentally [2], in the simple case of 2-level systems. Observation of Raman processes requires systems having at least three levels, one in the upper state, two in the lower state. At first sight, one could think that going from two to three levels complicates very much the algebra, since we have now eight Bloch's equations for the density matrix elements instead of three. In fact, this is not true, and we would like to show in this paper how it is possible to understand the modifications of Raman effect with practically no new calculations, even if the presence of two sublevels in the lower state leads, through optical pumping effects, to results qualitatively different from those of the 2-level case.

Let's first give some notations (Fig. 1). We will call e the upper atomic state, g and g' the two sublevels of the lower state separated by a splitting S , ω_0 and ω'_0 the frequencies of the two transitions $e-g$ and $e-g'$, Γ the natural width of e , equal to the sum of the two spontaneous transition rates γ and γ' from e to g and from e to g' .

We consider a beam of such atoms irradiated at right angles by a single mode laser so that one gets rid of Doppler effect. The laser has a frequency ω_L and a polarization such that it can excite both transitions $e-g$ and $e-g'$. The coupling of the laser with these two transitions is characterized by the two Rabi frequencies $\omega_1 = \vec{E}_L \cdot \vec{d}_{eg}$, $\omega'_1 = \vec{E}_L \cdot \vec{d}_{eg'}$ equal to the product of the laser electric field $\vec{E}_L$ by the dipole moments $\vec{d}_{eg}$ and $\vec{d}_{eg'}$ associated respectively with $e-g$ and $e-g'$.

The theoretical problem we are interested in concerns the scattered light emitted perpendicularly to the laser and atomic beams. How does the spectrum of this scattered light change when the laser intensity I_L is progressively increased from very low to very high values?

We will first briefly recall the well known lowest order results concerning Raman effect [3]. Then, some higher order processes which become important at higher intensities will be discussed. We will also consider the case where the laser is tuned in resonance with one transition, saturating this transition but not the second one. Finally, we will discuss the very high intensity limit where the laser is so intense that it can saturate both

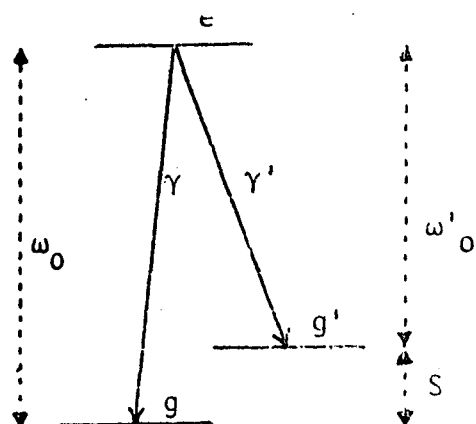


Fig. 1 Energy diagram of the 3-level atomic system

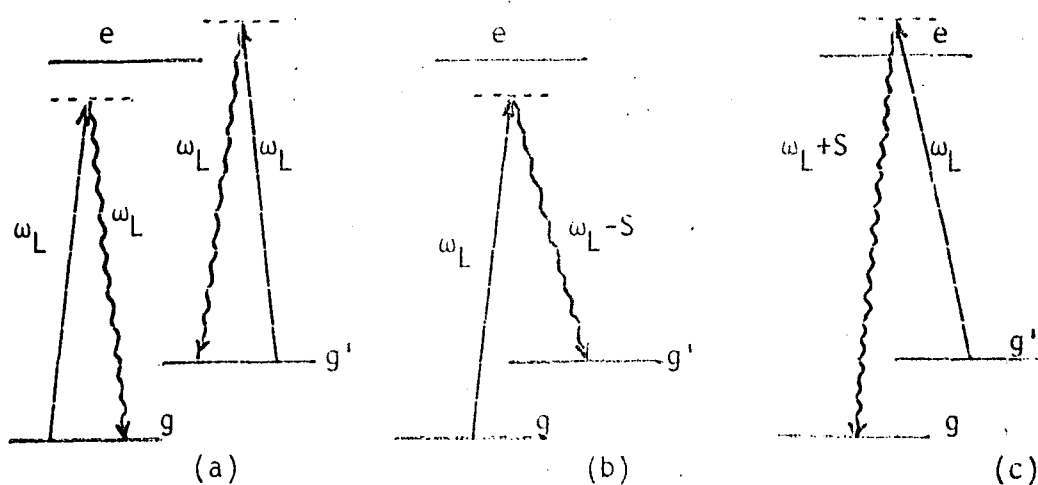


Fig. 2 Lowest order processes corresponding to Rayleigh (a), Raman Stokes (b) and Raman anti Stokes (c) scattering.

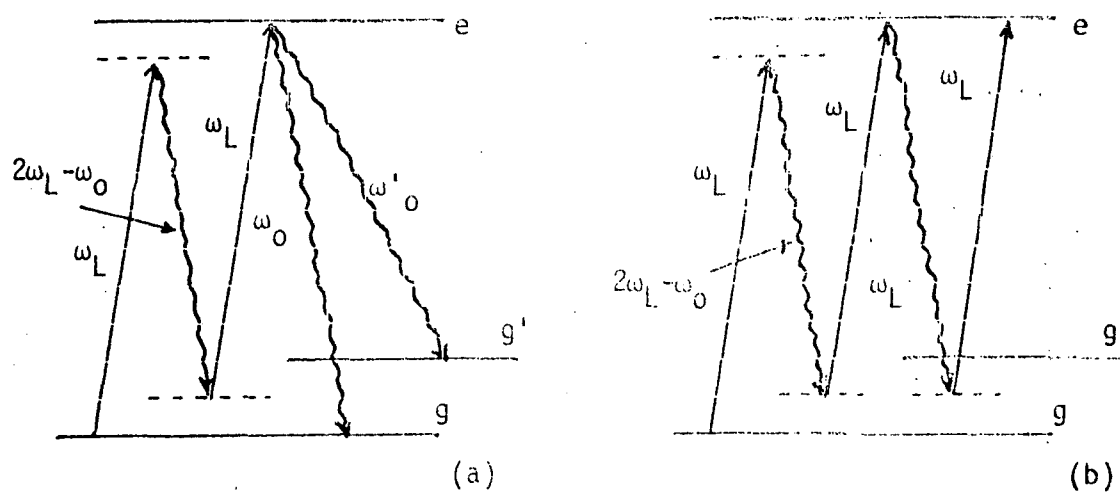


Fig. 3 Some higher order processes

transitions. The emphasis will be put on physical discussions rather than on detailed calculations which can be found in Ref. [4].

2. Lowest order results

Three types of processes can occur at very low intensities (Fig. 2) : Rayleigh type processes (Fig. 2-a) where the atom starts and ends in the same sublevel of the lower state, g or g' , absorbing one laser photon ω_L and reemitting one photon which must have exactly the laser frequency because of energy conservation. Raman Stokes processes (Fig. 2-b) where the atom, starting from g , absorbs one ω_L photon and ends in g' , emitting a photon with frequency $\omega_L - S$. The symmetric process where the atom starts from g' and ends in g , absorbing ω_L and emitting $\omega_L + S$, is called Raman anti Stokes (Fig. 2-c).

At very low intensities, one expects therefore in the spectrum of the scattered light three delta-functions at ω_L , $\omega_L - S$, $\omega_L + S$, each of them having a weight proportional to the laser intensity I_L . Note also that because of Raman processes, there is an optical pumping of atoms from g to g' or from g' to g . If the interaction time is sufficiently long, a steady state will be reached in which the number of transitions from g to g' balances the number of transitions from g' to g . This means that, in the steady state, the number of photons emitted at $\omega_L - S$ and $\omega_L + S$ are the same, so that the spectrum is symmetric. Finally, if $\omega_L = 0$, i.e. if the laser polarization is such that the transition $e-g'$ cannot be excited, each atom pumped in g' will not be able to leave this state, so that, after a certain time, all atoms will be trapped in g' and the scattered light will vanish.

3. Some higher order processes

If the light intensity is increased, it becomes necessary to consider higher order processes where, instead of interacting with a single laser photon, the atom interacts with two laser photons, three laser photons ... and so on. Some of these higher order processes are sketched on Fig. 3.

For example (Fig. 3-a), the atom can absorb two laser photons (represented by full arrows) and emit two fluorescence photons (represented by wavy arrows). The corresponding amplitude is large when, after the absorption of the second laser photon, the atom reaches the excited state within the natural width Γ of this state. This means that the first fluorescence photon has a frequency $2\omega_L - \omega_0$ (within Γ) and also that the second fluorescence photon has a frequency ω_0 or ω'_0 according as the atom ends in g or in g' . Similar processes occurring from g' lead to fluorescence photons at $2\omega_L - \omega'_0$ and also at ω_0 or ω'_0 . We therefore predict four new lines appearing at the four frequencies ω_0 , ω'_0 , $2\omega_L - \omega_0$, $2\omega_L - \omega'_0$, with an intensity proportional to I_L^2 , since two laser photons are involved, and a width of the order of Γ due to the width of the upper level e .

We have also represented on Fig. 3-b an example of a three photon process in which, after having been put in the upper state e as in the two previous examples, the atom emits a fluorescence photon and comes back to e by absorbing a third laser photon ω_L . This can be considered as an "inverse Rayleigh" process from e and gives rise to a new line at ω_L , with an intensity proportional to I_L^3 and a width of the order of Γ .

All these perturbative results which are valid for sufficiently large detunings between the laser and atomic frequencies can be confirmed by a more

precise calculation. One finds that there are seven lines in the spectrum of the scattered light. The more intense ones, proportional to I_L , are the Rayleigh (ω_L) and Raman ($\omega_L \pm S$) lines. The Raman lines are not infinitely narrow, as predicted by lowest order theory, but they have a small width of the order of $1/T_p$, where T_p (pumping time between g and g') can be considered as the lifetime of the lower state, much longer however than the lifetime $1/\Gamma$ of the upper state. The Rayleigh line has a structure. One component has a width of the order of $1/T_p$, as the Raman lines. The second component is a $\delta(\omega - \omega_L)$ function corresponding to the coherent scattering by the mean dipole moment driven at ω_L by the laser wave. Then, we have weaker lines, in I_L^2 or I_L^3 , at ω_0 , ω'_0 , $2\omega_L - \omega_0$, $2\omega_L - \omega'_0$, ω_L , with a width of the order Γ , corresponding to the higher order processes discussed above. Finally, one must note that the spectrum is symmetric in steady state. We have already discussed this point for the Raman lines. For the weaker lines, this symmetry is partly due to the fact that, in the second order processes, the fluorescence photons always appear by pairs.

If the laser intensity is still increased, it is clear that the perturbative approach used so far breaks down, especially if the laser is tuned in resonance with one of the 2 transitions.

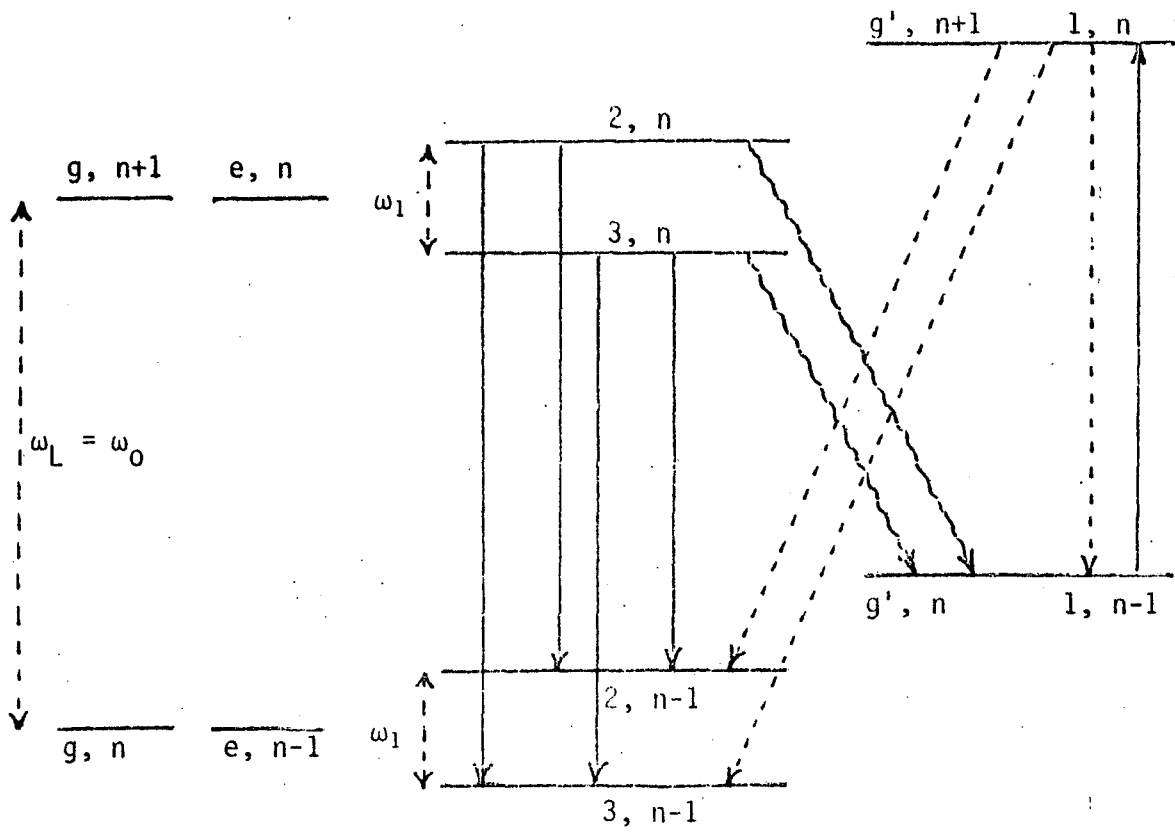
4. Laser in resonance with one transition, saturating this transition but not the second one

Suppose for example that $\omega_L = \omega_0$, so that the laser is in resonance with $e-g$, and suppose that $\omega_L \gg \Gamma$, so that $e-g$ is saturated. The detuning of the laser with the second transition $e-g'$ is equal to the splitting S between g and g' . We will suppose first that $\omega'_1 \ll S$, so that the laser is not sufficiently intense for saturating $e-g'$: $e-g$ is saturated but not $e-g'$.

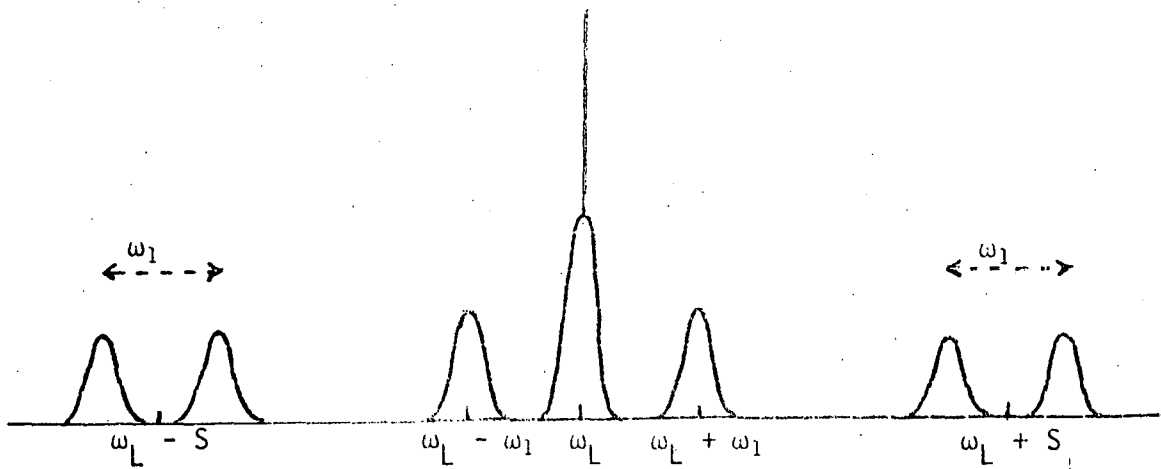
In order to understand what happens in that case, the idea is, in a first step, to forget g' and to apply the well known results of the two-level case to the $e-g$ transition which is saturated. Then, in a second step, one can try to understand the perturbation due to g' .

Let's consider first some energy levels of the combined system atom + laser photons, without any coupling, i.e. with $\omega_1 = \omega'_1 = 0$. Since $\omega_L = \omega_0$, the two states $|g, n\rangle$ (atom in g with n photons) and $|e, n-1\rangle$ (atom in e with $n-1$ photons) are degenerate. The same result holds for $|g, n+1\rangle$ and $|e, n\rangle$ which are at a distance ω_L above. On the other hand, $|g', n\rangle$ is at a distance S above $|g, n\rangle$, $|g', n+1\rangle$ at a distance S above $|g, n+1\rangle$ (Fig. 4-a).

Now, we introduce the coupling ω_1 between $|g, n\rangle$ and $|e, n-1\rangle$, $|g, n+1\rangle$ and $|e, n\rangle$..., but we maintain $\omega'_1 = 0$, i.e. we still ignore any coupling between $|g', n\rangle$ and $|e, n-1\rangle$, $|g', n+1\rangle$ and $|e, n\rangle$... The two unperturbed states $|g, n\rangle$ and $|e, n-1\rangle$ transform into two perturbed states $|2, n-1\rangle$ and $|3, n-1\rangle$, separated by ω_1 , and similarly $|g, n+1\rangle$ and $|e, n\rangle$ transform into $|2, n\rangle$ and $|3, n\rangle$. The spontaneous transitions between these two doublets, represented by full arrows on Fig. 4-a, give rise, in the scattered light, to a well known triplet, formed by three lines, one at $\omega_L + \omega_1$ (transition $|2, n\rangle \rightarrow |3, n-1\rangle$), one at $\omega_L - \omega_1$ (transition $|3, n\rangle \rightarrow |2, n-1\rangle$), one at ω_L (degenerate transitions $|i, n\rangle \rightarrow |i, n-1\rangle$ with $i = 2, 3$). The widths are of the order of Γ , since the width of $|e, n\rangle$ is shared between the two perturbed states $|2, n\rangle$ and $|3, n\rangle$. Since the transition is saturated, there is no mean dipole moment, and consequently, no $\delta(\omega - \omega_L)$ function corresponding to a coherent scattering.



(a)



(b)

Fig. 4 Raman effect in intense laser fields ($\omega_L = \omega_0$, $\omega_1 \gg \Gamma$, $\omega_1' \ll S$). Various energy levels of the system atom-laser photons and various transitions between these energy levels (Fig. a) giving rise to the spectrum represented on Fig. b.

Even if $\omega'_1 = 0$, i.e. even if the laser is not coupled to $e-g'$, spontaneous transitions can occur from e to g' with a rate γ' . It follows that there are also two decay channels, represented by wavy arrows on Fig. 4-a, connecting $|2, n\rangle$ and $|3, n\rangle$ to $|g', n\rangle$, and giving rise in the scattered light to two lines at $\omega_L - S \pm \omega_1/2$, with a width of the order of Γ . This doublet structure of the Raman Stokes line may be interpreted as a manifestation of the Autler-Townes splitting on the $e-g'$ transition [5] [6] [7]. The important point is that, once an atom falls back in $|g', n\rangle$, it cannot escape from it when $\omega'_1 = 0$. It follows that optical pumping effects can trap all atoms in g' , and now in a very short time, of the order of $1/\gamma'$, since the populations of e and g are very rapidly equalized by the intense resonant laser beam.

We therefore understand why it is important to have a non zero value of ω'_1 , which brings in the perturbed state $|1, n\rangle$ associated with $|g', n+1\rangle$ a small admixture of $|e, n\rangle$, of the order of ω'_1/S , allowing new weak transitions $|1, n\rangle \rightarrow |2, n-1\rangle$, $|1, n\rangle \rightarrow |3, n-1\rangle$ and $|1, n\rangle \rightarrow |1, n-1\rangle$ represented in dotted lines on Fig. 4-a, and reintroducing in $|2, n-1\rangle$, $|3, n-1\rangle$ a small population, of the order of $(\omega'_1/S)^2$. These transitions can also be interpreted as anti Stokes processes from g' , giving rise to two lines at $\omega_L + S \pm \omega_1/2$. There is also a non-resonant Rayleigh process from g' , reintroducing a $\delta(\omega - \omega_L)$ function.

All these results are summarized on Fig. 4-b.

There are always seven lines in the spectrum of the scattered light, one triplet and two doublets. The splitting of the triplet and of the two doublets is now given by the Rabi frequency ω_1 .

The intensity of all lines is in $(\omega'_1/S)^2$. The transitions starting from $|2, n\rangle$ or $|3, n\rangle$ have a large transition probability, of the order of 1, but the levels $|2, n\rangle$ and $|3, n\rangle$ have a small population, of the order of $(\omega'_1/S)^2$. On the other hand the population of $|1, n\rangle$ is large, but the transitions starting from this level are weak. This means that optical pumping effects drastically reduce the intensity of the scattered light, in comparison to the 2-level case, by a factor $(\omega'_1/S)^2 \ll 1$.

The $\delta(\omega - \omega_L)$ function does not disappear as in the 2-level case in the high intensity limit. It is mainly due to coherent scattering from g' and represents another consequence of optical pumping effects.

Apart from the $\delta(\omega - \omega_L)$ function, the width of all other lines is of the order of Γ . There are no narrow lines as above. This is due to the finite width of the upper or lower state of the transitions.

Finally, from detailed balance considerations, the spectrum can be shown to be symmetric in the steady state.

5. Very high intensity limit : Laser saturating both transitions

One could think that going to the very high intensity limit, where both ω_1 and ω'_1 are large compared to Γ and S , so that both transitions $e-g$ and $e-g'$ are saturated, can suppress all these optical pumping effects and lead to a saturation of the scattered intensity. We would like now to show that this is not true.

Let's first consider the particular case where $S = 0$, i.e. where g and g' are degenerate so that $\omega_0 = \omega'_0$ and let's suppose that the laser is in resonance with these 2 transitions, so that $\omega_0 = \omega'_0 = \omega_L$. Since the 2 levels g and g' are degenerate, one can choose any new basis in the lower state by taking any set of 2 orthonormal linear combinations of g and g' . If, for example, one takes

$$\begin{aligned} |G\rangle &= \frac{1}{\Omega_1} \left[\omega_1 |g\rangle + \omega'_1 |g'\rangle \right] \\ |G'\rangle &= \frac{1}{\Omega_1} \left[\omega'_1 |g\rangle - \omega_1 |g'\rangle \right] \end{aligned}$$

where $\Omega_1^2 = \omega_1^2 + \omega'^1_1$,

one can easily show that only the transition $e-G$ is coupled to the laser with a Rabi frequency Ω_1 whereas the second is not. It follows that we are again led to a 2-level system and to optical pumping effects which can trap all atoms in G' .

In fact, S is different from 0, but, in the limit we are considering here, Ω_1 is very large compared to S and Γ , so that we will proceed as follows. First, we treat the effect of the coupling Ω_1 , S being neglected. Then, we treat perturbatively the effect of a non-zero value of S .

If both Ω_1 and S are equal to 0, the 3 states $|G, n\rangle$, $|G', n\rangle$ and $|e, n-1\rangle$ are degenerate and similarly $|G, n+1\rangle$, $|G', n+1\rangle$, $|e, n\rangle$ which are at a distance ω_L above (Fig. 5-a).

Let's then consider the effect of the coupling Ω_1 between $|G, n\rangle$ and $|e, n-1\rangle$, $|G, n+1\rangle$ and $|e, n\rangle$. One gets a series of doublets, $|1, n-1\rangle$ and $|3, n-1\rangle$, $|1, n\rangle$ and $|3, n\rangle$ with a splitting Ω_1 . The level $|G', n+1\rangle$ is not perturbed and remains half way between $|1, n\rangle$ and $|3, n\rangle$.

We now treat the effect of S perturbatively. The corresponding operator, $S|g'\rangle\langle g|$, has in the basis $|1, n\rangle$, $|3, n\rangle$, $|G', n+1\rangle$ both diagonal and off diagonal elements.

The diagonal elements represent first order energy shifts which are small compared to Ω_1 since $S \ll \Omega_1$. One can easily show that $|1, n\rangle$ and $|3, n\rangle$ are shifted by the same amount, different from the shift of $|G', n+1\rangle$. It follows that $|G', n+1\rangle$ is at a distance $S\tau/2$ from the middle of the interval $|1, n\rangle$, $|3, n\rangle$, where the dimensionless parameter τ is easily found to be given by :

$$\tau = \frac{2\omega_1^2 - \omega'^1_1^2}{\omega_1^2 + \omega'^1_1^2}.$$

If one neglects the off diagonal elements associated with S , the state $|G', n+1\rangle$ remains not coupled to $|1, n-1\rangle$ and $|3, n-1\rangle$ by spontaneous emission, so that one gets only the spontaneous transitions connecting $|1, n\rangle$ and $|3, n\rangle$ to $|1, n-1\rangle$ and $|3, n-1\rangle$, represented by full arrows on Fig. 5-a, and forming a triplet at ω_L , $\omega_L \pm \Omega_1$ and the spontaneous transitions connecting $|1, n\rangle$ and $|3, n\rangle$ to $|G', n\rangle$, represented by wavy arrows on Fig. 5-a and giving rise to two lines at $\omega_L + (\Omega_1/2) - (S\tau/2)$

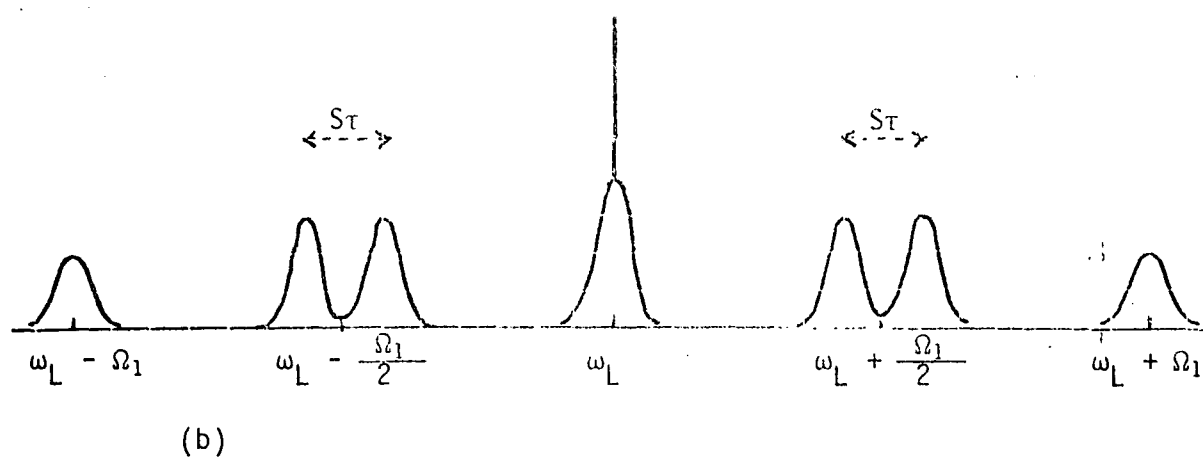
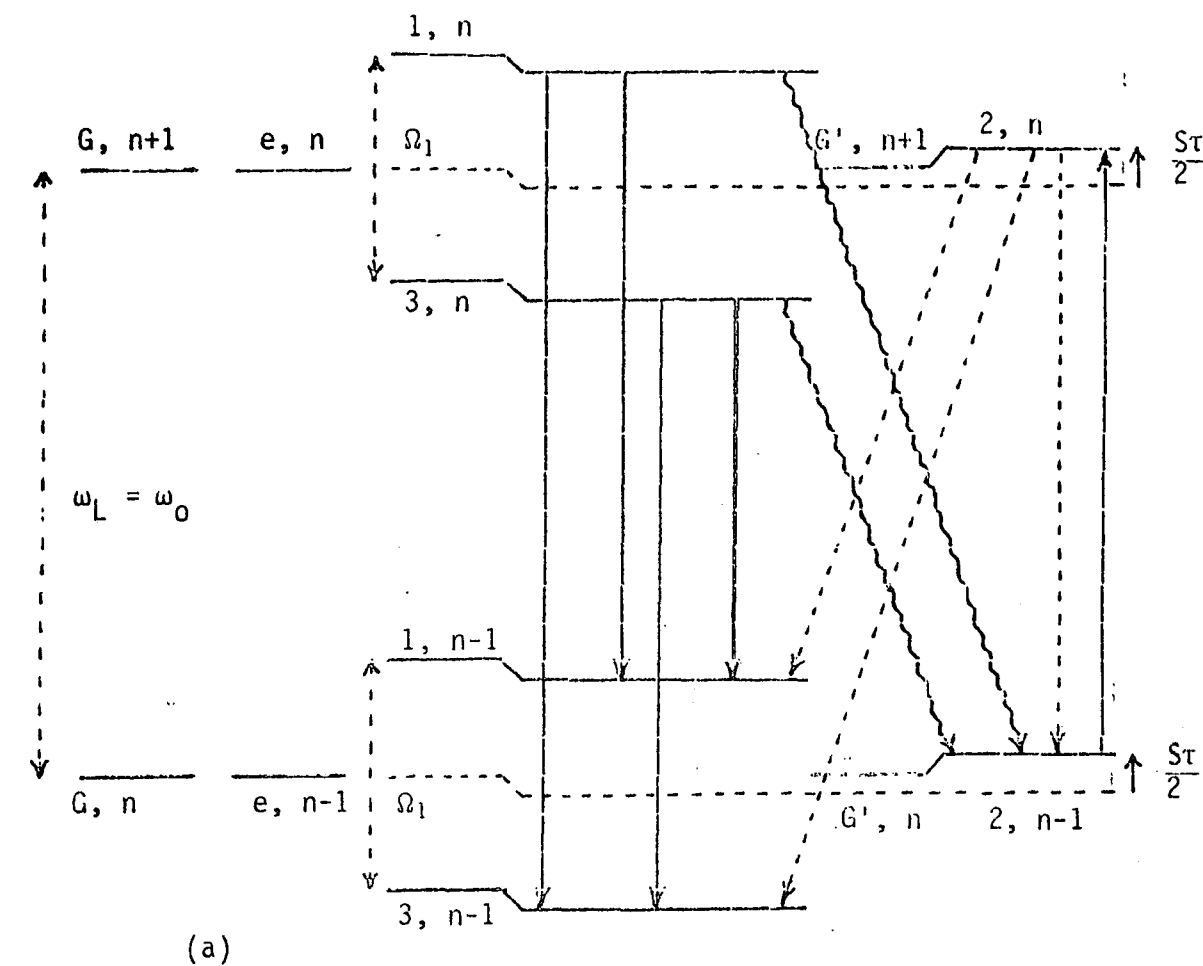


Fig. 5 Raman effect in very intense fields ($\omega, \omega'_1 \gg S, \Gamma$). Various energy levels of the system atom-laser photons and various transitions between these energy levels (Fig. a) giving rise to the spectrum represented on Fig. b.

and $\omega_L = (\Omega_1/2) - (S\tau/2)$.

Actually, the off diagonal elements associated with S bring in the perturbed state $|2, n\rangle$ corresponding to $|G', n+1\rangle$ a small admixture of $|e, n\rangle$, allowing spontaneous transitions from $|2, n\rangle$ to $|1, n-1\rangle$ and $|3, n-1\rangle$ (represented in dotted lines on Fig. 5-a) and reintroducing in $|1, n-1\rangle$ and $|3, n-1\rangle$ a small population, of the order of $(S/\Omega_1)^2$. These transitions can also be interpreted as non resonant scattering processes from G' , giving rise to two lines at $\omega_L = (\Omega_1/2) + (S\tau/2)$ and $\omega_L = (\Omega_1/2) - (S\tau/2)$ and to a $\delta(\omega - \omega_L)$ function corresponding to coherent scattering.

We therefore arrive to the following conclusions concerning the very high intensity limit where both transitions $e-g$ and $e-g'$ are saturated (Fig. 5-b).

We have always seven lines, but now they form three singlets and two doublets.

The main splittings are determined by Ω_1 . S only appears in the splittings of the doublets. This means that we have a complete mixing between the initial Rayleigh, Raman Stokes and Raman anti Stokes lines which can be more precisely followed by a computer calculation of the position of the seven lines for an arbitrary intensity. Fig. 11 of Ref. [4] shows the 3 Rayleigh and Raman lines which first split into a triplet and 2 doublets and which progressively transform into 3 singlets and 2 doublets when the laser intensity is increased.

The most important point concerns perhaps the intensity of all lines which is in $(S/\Omega_1)^2$, i.e. in $1/I_L$. The reason is, as above, that strong transition probabilities correspond to weak populations and vice-versa.

This clearly shows the importance of optical pumping effects.

- First, not only the intensity of the lines does not saturate but it decreases as $1/I_L$.
- Second, we have an accumulation of atoms in G' , i.e. in a linear superposition of g and g' .
- Third, the $\delta(\omega - \omega_L)$ function, which is due to coherent scattering from G' , does not disappear.

Finally, as above, one can show that the width of all other lines is of the order of Γ and that the spectrum is symmetric in the steady state.

In conclusion, we have shown in this paper how it is possible to understand the modification of Raman effect when the laser intensity is progressively increased from very low to very high values.

We have only considered pure radiative effects. Collision processes in 3-level systems can also lead to very interesting effects. By introducing transfers between the various energy levels, they are responsible for important asymmetries in the spectrum of the scattered light. We will not enter into these problems since they are discussed in the subsequent paper [8].

References

1. B.R. Mollow, Phys. Rev., 183, 1969 (1969); see also the list of references

in C. Cohen-Tannoudji, *Frontiers in Laser Spectroscopy*, Les Houches 1975, Session XXVII, ed. R. Balian, S. Haroche and S. Liberman (North Holland, 1977).

2. F. Schuda, C.R. Stroud Jr. and M. Hercher, *J. Phys.* B7, L 198 (1974).
F.Y. Wu, R.E. Grove and S. Ezekiel, *Phys. Rev. Lett.*, 35, 1426 (1975).
W. Hartig, W. Rasmussen, R. Schieder and H. Walther, *Z. Phys.* A278, 205 (1976).
3. W. Heitler, *Quantum Theory of Radiation*, 3rd edition (Oxford University Press, 1954).
4. C. Cohen-Tannoudji and S. Reynaud, *J. Phys.*, B10, 365 (1977).
5. S.H. Autler and C.H. Townes, *Phys. Rev.*, 100, 703 (1955).
6. B.R. Mollow, *Phys. Rev.*, A5, 1522 (1972).
7. E.V. Baklanov, *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 65, 2203 (1973) [*Sov. Phys. JETP*, 38, 1100 (1973)].
8. Subsequent paper by J. Carlsten and M.G. Raymer.

DEUXIEME PARTIE

LES SPECTRES DE FLUORESCENCE OU D'ABSORPTION D'UNE
VAPEUR EXCITEE PAR LASER

CHAPITRE II-1

INTRODUCTION

STRUCTURES SUB DOPPLER DANS LES SPECTRES DE FLUORESCENCE OU D'ABSORPTION D'UNE VAPEUR.

Les problèmes que nous allons étudier dans cette deuxième partie correspondent à une situation expérimentale très fréquente dans le domaine de la spectroscopie laser non-linéaire : une vapeur est excitée par un laser monomode intense dont la fréquence ω_L est résonnante (ou quasi-résonnante) avec une transition atomique ; on observe le spectre de fluorescence ou d'absorption, sur la transition saturée elle-même ou sur une transition couplée à la transition saturée, dans la même direction (même sens ou sens opposé).

Un exemple d'une telle expérience est schématisé sur la figure II-1.1.

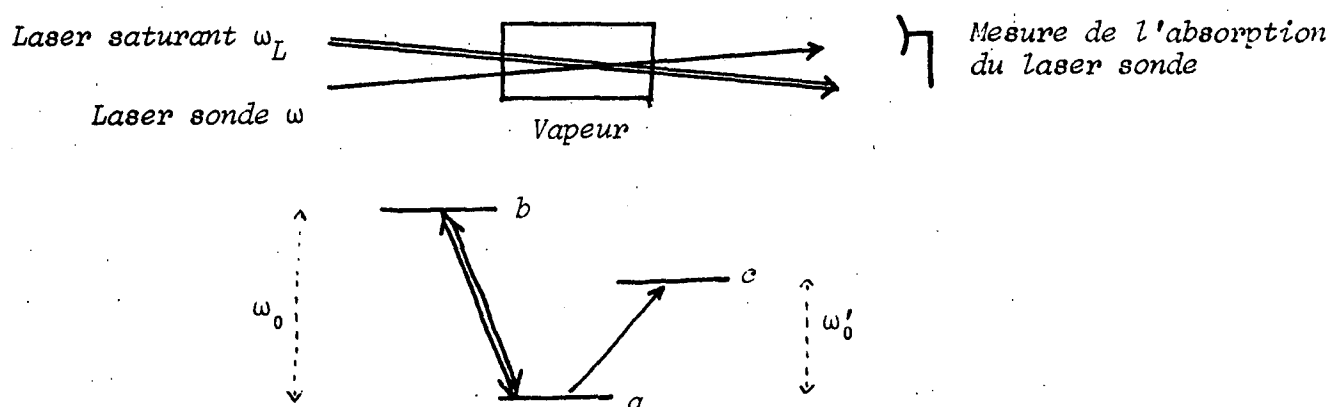


Fig I-1.1 : Un exemple d'expérience en spectroscopie laser non linéaire. Un laser intense de fréquence ω_L sature la transition ba (fréquence atomique ω_0). On mesure l'absorption d'un laser sonde de fréquence résonnant avec la transition ca (fréquence ω'_0). Les deux lasers font entre eux un angle très petit.

En l'absence de saturation de la transition ba, la spectre d'absorption sur la transition ca serait une gaussienne centrée sur ω'_0 et ayant une largeur Δ' (élargissement Doppler de la raie d'émission). La présence du laser résonnant avec la transition ba fait apparaître des structures plus étroites (structures sub Doppler) que l'on peut comprendre par le modèle simple des "trous de population" ("hole burning") (Fig II-1.2)

[Ba 6]. Le laser tend à égaliser les populations des deux niveaux a et b pour les atomes de vitesse telle qu'il soit résonnant (on a supposé sur la figure II-1.2a $\omega_L = \omega_0$; les atomes saturés sont les atomes de vitesse nulle). L'absorption du faisceau sonde mesure la différence entre les populations de a et c et met ainsi en évidence le "trou de population" creusé dans la distribution des vitesses par le laser saturant (Fig II-1.2 : les traits pointillés représentent la situation en l'absence de saturation).

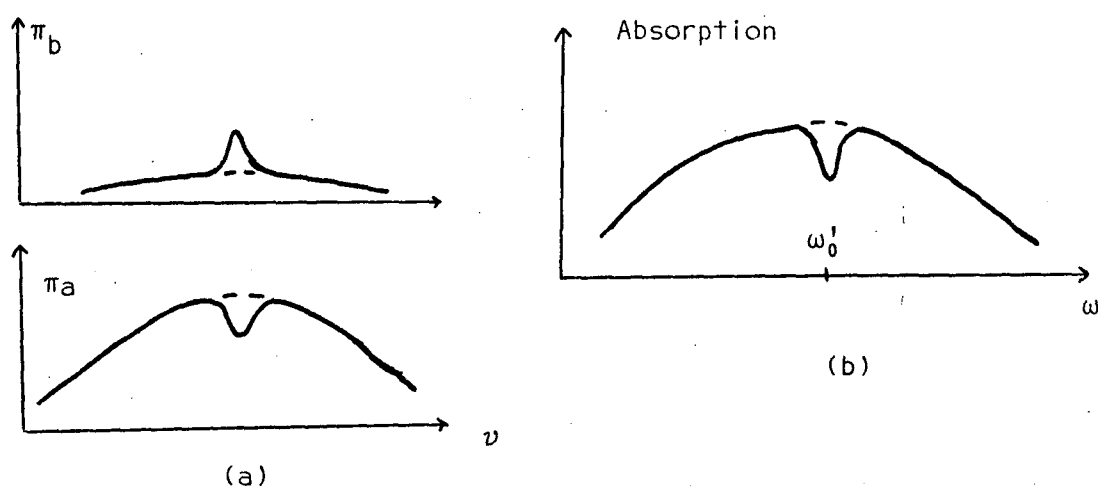


Fig II-1.2 : Le modèle des "trous de population"

Il est maintenant bien connu que ce modèle est insuffisant parce qu'il néglige des effets importants :

- l'irradiation par le laser quasi-résonnant avec la transition ba provoque un déplacement lumineux ("light shift" [Dj]) du niveau a et donc déplace la fréquence d'absorption sur la transition ca (Fig II-1.3a)

- de nouvelles fréquences d'absorption apparaissent, correspondant à des processus tels que celui de la Fig II-1.3b où l'atome passe de c en b (ou réciproquement) en absorbant un photon d'une onde laser et en émettant un photon dans l'autre onde.

- l'approche perturbative utilisée jusqu'à présent n'est valable que loin de la résonance (c'est-à-dire tant que la fréquence de Rabi ω_1 est plus petite que l'écart entre la fréquence atomique et la fréquence laser) ; à résonance, les processus correspondant aux deux figures II-1.3a et II-1.3b sont mélangés l'un à l'autre, donnant naissance à l'effet Autler Townes optique ou effet Stark dynamique [Dj 7]. Le spectre d'absorption reste un doublet mais on ne peut plus calculer perturbativement ses caractéristiques (voir plus loin le § II-3).

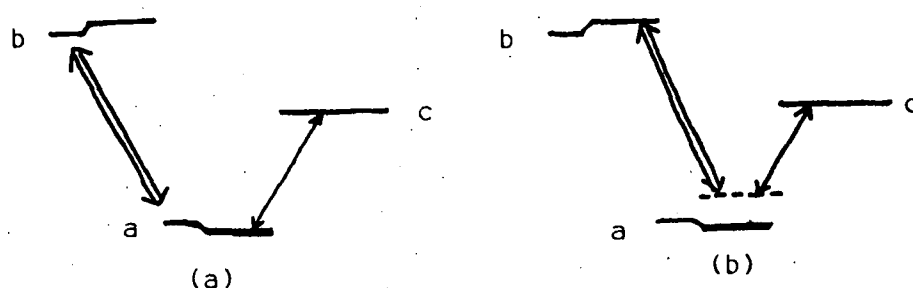


Fig II-1.3 : (a) Déplacement de la fréquence de la transition ca
(b) Apparition d'une nouvelle fréquence.

Ces effets de modification des fréquences d'absorption (qui sont aussi les fréquences d'émission) sont tellement importants qu'ils peuvent faire apparaître des structures étroites en l'absence de tout effet de population.

Supposons en effet que l'on étudie le spectre de fluorescence sur la transition ca (Fig II-1.4) et non plus le spectre d'absorption (Fig II-1.1).

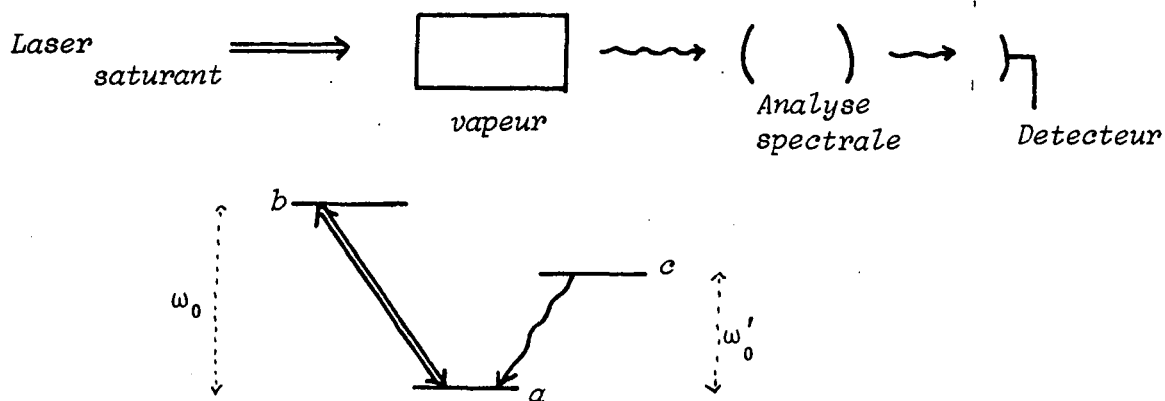


Fig II-1.4 : Un laser intense de fréquence ω_L sature la transition ba (fréquence ω_0) et on étudie la répartition spectrale de la fluorescence émise sur la transition ca (par exemple avec un interféromètre de Fabry-Pérot).

Le signal d'émission spontanée sur la transition ca , ne dépend que de la population du niveau supérieur π_c ; il n'est donc pas sensible au trou creusé par l'irradiation laser dans la population du niveau inférieur π_a alors que le signal d'absorption était par contre proportionnel à $(\pi_a - \pi_c)$. De plus, le niveau c , peuplé par exemple par une décharge, n'est pas couplé au laser (résonnant avec ba) et la population π_c n'est donc pas modifiée par l'irradiation laser (pas de trou de population dans la courbe $\pi_c(\nu)$).

Or nous allons montrer que l'on peut observer des structures étroites dans le spectre d'émission spontanée de c vers a . D'après la discussion précédente, elles ne peuvent en aucune façon être attribuées à un effet de population. En fait, ces résonances sont dues uniquement au déplacement lumineux produit par l'irradiation laser sur l'état final a de la transition $c \rightarrow a$. Le raisonnement est illustré sur la figure II-1.5.

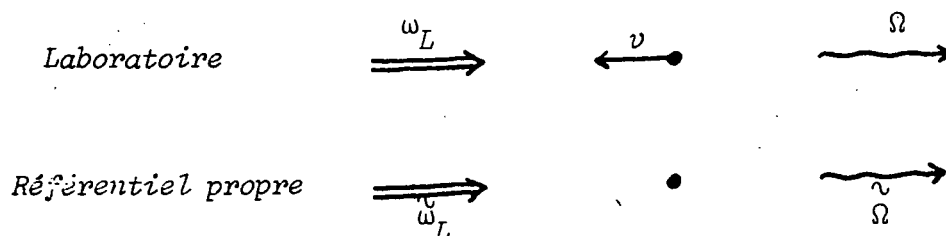


Fig II-1.5 : Fréquence du laser et fréquence d'émission vers l'avant dans le laboratoire et dans le référentiel propre de l'atome ; v est la vitesse de l'atome dans le laboratoire.

Pour étudier l'interaction de l'atome avec le faisceau laser, il faut se déplacer dans son référentiel propre où, par suite de l'effet Doppler, la fréquence apparente $\tilde{\omega}_L$ du laser vaut :

$$\tilde{\omega}_L = \omega_L (1 + v/c) = \omega_L + \omega_0 v/c \quad (11-1.1)$$

(pour écrire cette formule, nous avons négligé l'effet Doppler du second ordre ainsi qu'un terme $(\omega_L - \omega_0) v/c$ du même ordre que l'effet Doppler du second ordre).

Les fréquences $\tilde{\Omega}$ émises (autour de ω_0') par l'atome dans son référentiel propre dépendent de la fréquence apparente du laser $\tilde{\omega}_L$. En effet, le déplacement lumineux du niveau a (Fig 11-1.3a) dépend non seulement de l'intensité du laser mais aussi de l'écart à résonance $\tilde{\omega}_L - \omega_0$. Revenons finalement au référentiel du laboratoire (Fig 11-1.5). Par suite de l'effet Doppler à l'émission, les fréquences d'émission Ω dans le laboratoire s'écrivent

$$\Omega = \tilde{\Omega}(\tilde{\omega}_L) (1 - v/c) = \tilde{\Omega}(\tilde{\omega}_L) - \omega_0' v/c \quad (11-1.2)$$

(même remarque que pour l'équation 11-1.1).

La dépendance de Ω par rapport à la vitesse est donc due à deux effets physiques différents : l'interaction avec le laser qui modifie les fréquences d'émission dans le référentiel propre d'une manière dépendant de la vitesse (premier terme de 11-1.2 : Ω dépend de $\tilde{\omega}_L$ qui dépend de v d'après 11-1.1) ; le déplacement Doppler habituel (deuxième terme de 11-1.2)

Sous certaines conditions, il peut y avoir compensation entre ces deux dépendances en v ; des classes de vitesse différentes émettent alors à la même fréquence Ω dans le laboratoire et il apparaît à cette fréquence une structure étroite dans le spectre de fluorescence. On peut dire en quelque sorte que l'effet Doppler à l'émission sur ça est compensé par des déplacements lumineux du niveau a dépendant de la vitesse. On obtient aisément à partir de (11-1.1) et (11-1.2) la condition mathématique d'une telle compensation :

$$d\Omega/dv = 0 \quad \rightarrow \quad d\tilde{\Omega}/d\tilde{\omega}_L = \omega_0' / \omega_0 \quad (11-1.3)$$

On peut montrer que la condition (11-1.3) ne peut être satisfaite que si l'intensité laser est suffisante pour saturer la transition atomique. Le phénomène de compensation de l'effet Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse ne peut donc être compris complètement qu'en traitant non perturbativement l'interaction atome-laser.

Avant d'aller plus loin, notons une caractéristique très intéressante de cet effet, à savoir sa grande anisotropie. Si l'on étudie la fluorescence non plus vers l'avant, (Fig 11-1.4 et 11-1.5) mais vers l'arrière, l'expression (11-1.2) de $\tilde{\Omega}$ devient

$$\tilde{\Omega} = \tilde{\Omega}(\omega_L) + \omega_0' v/c \quad (11-1.4)$$

Si la variation de $\tilde{\Omega}$ avec ω_L compense le déplacement Doppler vers l'avant, elle le double vers l'arrière.

Les deux problèmes à résoudre :

La discussion précédente montre que pour comprendre les spectres de vapeur, il faut résoudre deux problèmes :

(i) il faut d'abord calculer non perturbativement, dans le référentiel propre de l'atome, quel est le spectre de fluorescence (ou d'absorption) d'un atome excité par un laser de fréquence ω_L .

Nous étudions seulement le cas où

$$\omega_1 \gg \gamma$$

(fréquence de precession de Rabi $\gg$ largeur homogène). Cette condition nous permet d'utiliser la méthode de l'atome habillé, développée dans la première partie, pour calculer les positions, les poids et les largeurs des raies du spectre.

(ii) Il faut ensuite sommer les spectres correspondant aux différentes vitesses des atomes de la vapeur. Quelle va être l'allure du spectre après cette sommation ? En particulier, va-t-il subsister des structures étroites ?

Notre but, dans cette deuxième partie, est de mettre en évidence l'intérêt d'une méthode graphique, fondée sur l'utilisation de diagrammes de fréquence, pour aborder ce problème de sommation sur les vitesses.

La méthode des diagrammes de fréquence

Le diagramme de fréquence est obtenu en reportant les fréquences d'émission $\tilde{\Omega}$ dans le référentiel propre (fréquences calculées par la méthode de l'atome habillé) en fonction de la fréquence apparente du laser $\tilde{\omega}_L$. Cette fréquence apparente $\tilde{\omega}_L$ étant reliée linéairement à la vitesse (eq. 11-1.1), on peut considérer que le diagramme de fréquence est une représentation graphique des fréquences d'émission $\tilde{\Omega}$ de tous les atomes de la vapeur (en fonction de leur vitesse).

Dans le prochain chapitre (§ 11-2), on montre que, quand le diagramme de fréquence est connu, on peut, par des arguments graphiques simples, obtenir l'allure du signal.

Dans le chapitre suivant (§ 11-3) sera construit le diagramme de fréquence correspondant à l'effet Autler Townes optique (situation expérimentale décrite par les figures 11-1.1 ou 11-1.4). Ceci nous permettra de retrouver des caractéristiques bien connues de cet effet et d'en prévoir de nouvelles lorsque la fréquence de Rabi ω_1 devient du même ordre ou beaucoup plus grande que la largeur Doppler.

Un grand avantage de la méthode graphique est de séparer clairement les effets dus aux déplacements des niveaux d'énergie (effets contenus entièrement dans le diagramme de fréquence) et les effets de population qui interviennent pour pondérer les contributions des diverses classes de vitesse. En particulier, les fréquences d'émission ou d'absorption de l'atome sont les mêmes et la discussion graphique sera donc la même pour les spectres de fluorescence ou d'absorption. Ici, nous mettons surtout l'accent sur les cas particulièrement simples où la population contribuant au signal n'est pas perturbée par l'interaction avec le laser (voir par exemple la figure 11-1.4). L'apparition de structures étroites a alors comme seule origine possible les déplacements des signaux d'énergie. Le calcul du signal présente alors la caractéristique très intéressante de ne pas dépendre du tout d'hypothèses sur l'évolution des populations couplées au laser ("modèle de population").

Application aux expériences mettant en évidence la compensation de l'effet Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse.

L'effet Autler Townes optique correspond à une situation particulièrement simple où seulement deux niveaux atomiques sont couplés au laser. Dans le chapitre II-4, nous étudions une situation où trois niveaux atomiques sont couplés au laser, deux de ces niveaux étant des sous niveaux Zeeman dont la dégénérescence est levée par un champ magnétique (Fig II-1.6). Cette situation correspond aux expériences décrites dans la troisième partie de la thèse et mettant en évidence la compensation de l'effet Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse

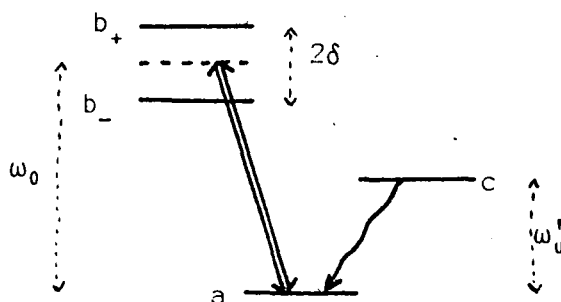


Fig II-1.6 : Les trois niveaux a ($J=0$), b_+ ($J=1, m=+1$) et b_- ($J=1, m=-1$) sont couplés au laser de polarisation σ . La dégénérescence Zeeman est levée par un champ magnétique (écart entre b_+ et b_- égal à 2δ). On observe la fluorescence émise en polarisation π de c ($J=1, m=0$) vers a .

On peut voir tout de suite pourquoi ce schéma de niveau est favorable à l'observation de l'effet de compensation. Supposons la fréquence laser ω_L accordée sur la fréquence atomique ω_0 en champ nul (Fig. II-1.6). Les fréquences $\omega_0 + \delta$ et $\omega_0 - \delta$ des deux transitions atomiques ab_+ et ab_- sont donc symétriques par rapport à ω_L et, pour un atome de vitesse nulle, le déplacement lumineux du niveau a est nul (les contributions des deux transitions ab_+ et ab_- à ce déplacement se compensent exactement). Par contre, pour un atome de vitesse v non nulle, la fréquence du laser est déplacée par effet Doppler et le déplacement lumineux n'est pas nul. Le premier terme en v est un terme linéaire qui peut, sous certaines conditions, compenser l'effet Doppler à l'émission (voir la discussion plus haut). Plusieurs avantages apparaissent donc par rapport au système à deux niveaux :

- la résonance de compensation se trouve à la fréquence atomique ω_0 de la transition $c \rightarrow a$ (elle ne subit pas elle-même de déplacement lumineux)
- la condition de compensation peut être obtenue par un ajustement du paramètre δ , c'est-à-dire du champ magnétique.
- les termes non linéaires en v , généralement en v^2 , limitent le nombre d'atomes pour lesquels la compensation est effective. Ici, le déplacement du niveau a est une fonction impaire de la vitesse ; il n'y a pas de terme en v^2 et la limitation provient seulement des termes en v^3 , v^5 , ...

La discussion ci-dessus resté perturbative et qualitative. Dans le chapitre II-4, nous construirons le diagramme de fréquence correspondant au schéma de niveaux de la Fig. II-1.6 (traitement non perturbatif de la saturation du système à trois niveaux a , b_+ et b_-) et nous en déduirons un certain nombre de résultats quantitatifs relatifs aux expériences décrites dans la troisième partie.

UTILISATION DES DIAGRAMMES DE FREQUENCES POUR UNE DISCUSSION GRAPHIQUE DE LA SOMMATION SUR LES VITESSES

Dans les prochains chapitres, nous construirons les diagrammes de fréquence correspondant à l'effet Autler Townes optique et aux expériences de compensation de l'effet Doppler. Ici, nous montrons de manière générale comment, lorsque le diagramme de fréquence est connu, on peut résoudre graphiquement le problème de la sommation sur les vitesses et donner une expression quantitative du signal reliée directement à la discussion graphique

II-2.1. Construction graphique des fréquences d'émission dans le laboratoire

Rappelons d'abord la définition du diagramme de fréquence : il donne les fréquences d'émission $\tilde{\omega}_1, \tilde{\omega}_2, \dots$ de l'atome dans son référentiel propre en fonction de la fréquence apparente $\tilde{\omega}_L$ du laser dans ce référentiel. Lorsque $\tilde{\omega}_L$ varie, $\tilde{\omega}_1, \tilde{\omega}_2, \dots$ décrivent des courbes que l'on appellera les "branches" du diagramme de fréquence.

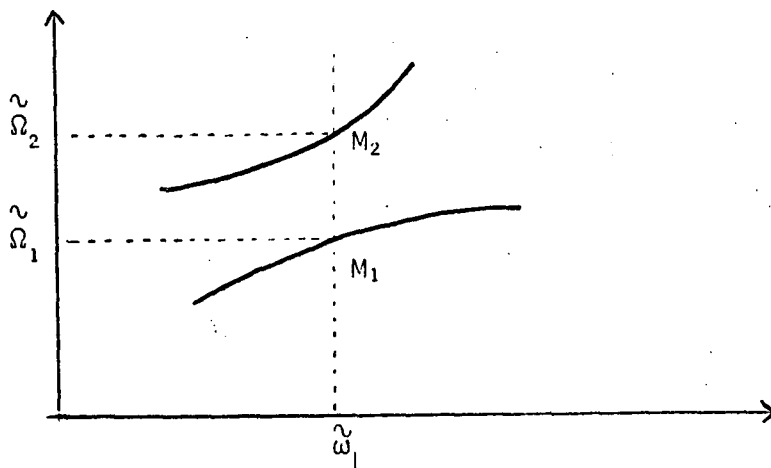


Fig II-2.1 : La signification du diagramme de fréquence : pour chaque valeur $\tilde{\omega}_L$ de la fréquence du laser "vue" par l'atome dans son référentiel propre, on porte en ordonnées les fréquences $\tilde{\omega}_1, \tilde{\omega}_2$, émises par l'atome dans ce référentiel ; les points $M_1, M_2 \dots$ ainsi définis engendrent les diverses "branches" du diagramme.

Montrons maintenant comment on peut déterminer graphiquement sur ce diagramme, les fréquences d'émission Ω dans le laboratoire.

Nous pouvons réécrire la relation (II-1.1) entre ω_L et $\tilde{\omega}_L$ sous la forme :

$$\tilde{\omega}_L = \omega_L + u \quad (II-2.1)$$

avec :

$$u = \omega_0 v/c \quad (II-2.2)$$

La variable u est ainsi, par définition, le déplacement Doppler de la fréquence laser et sera une variable commode (en unités de fréquence) pour représenter la vitesse d'un atome. Pour un atome de vitesse u , les fréquences $\tilde{\Omega}$ émises par cet atome dans son référentiel propre sont donc (d'après la définition du diagramme et d'après II-2.1) les ordonnées des points M du diagramme d'abscisse $\tilde{\omega}_L = \omega_L + u$.

On peut ensuite réécrire la relation (II-1.2) entre Ω et $\tilde{\Omega}$ sous la forme :

$$\tilde{\Omega} = \Omega + su \quad (II-2.3)$$

avec

$$s = \omega'_0 / \omega_0 \quad (II-2.4)$$

d'où l'on déduit

$$(\Omega - \tilde{\Omega}) = s(\omega_L - \tilde{\omega}_L) \quad (II-2.5)$$

Cette relation signifie que la droite joignant le point M (abscisse $\tilde{\omega}_L$, ordonnée $\tilde{\Omega}$) au point N (abscisse ω_L , ordonnée Ω) est une droite de pente s , ce qui permet finalement de déterminer graphiquement Ω (Fig II-2.2).

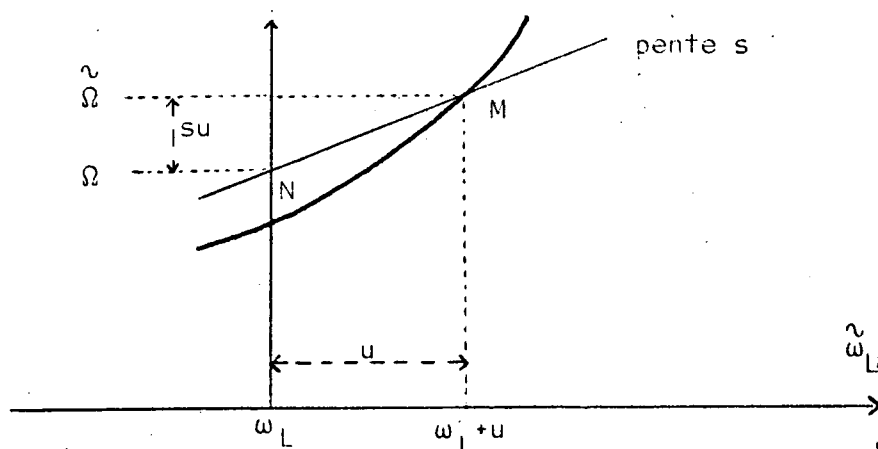


Fig II-2.2 Construction graphique de la fréquence Ω émise dans le laboratoire par un atome de vitesse u . Le diagramme comporte en fait plusieurs branches qui donnent chacune une fréquence d'émission.

Lorsque la vitesse u varie, le point M se déplace sur la branche du diagramme et le point N se déplace sur la verticale d'abscisse ω_L . Dans le cas intéressant où le diagramme de fréquence a un point M_0 où la pente p de la tangente est égale à s , des atomes de vitesses différentes, autour de u_0 , émettent à la même fréquence Ω_0 dans le laboratoire (ordonnée de N_0 sur la Fig II-2.3).

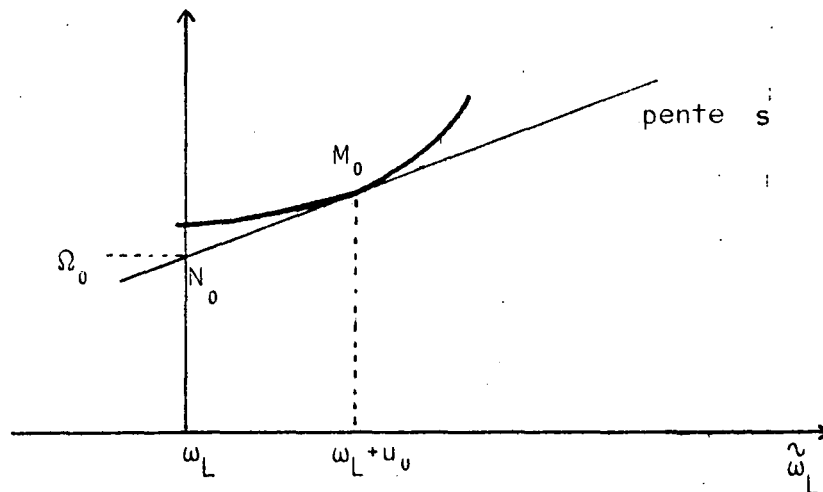


Fig II-2.3 : Dans le cas où la tangente en M_0 au diagramme de fréquence a une pente p égale à s , les atomes de vitesses proches de u émettent (dans le laboratoire) à la même fréquence Ω_0 .

On vient ainsi de retrouver graphiquement la condition de compensation de l'effet Doppler.

$$p = s$$

$$(II-2.6)$$

Comme $p = d\Omega/d\omega_L$ (puisque le diagramme représente la fonction $\Omega(\omega_L)$) et $s = \omega'_0/\omega_0$ (eq. II-2.4), cette condition est en effet identique à la condition (II-1.3) que nous avons dérivée algébriquement en écrivant $d\Omega/dv = 0$.

Remarque :

Dans le cas d'une observation vers l'arrière, tous les arguments restent identiques à condition de remplacer $s = \omega'_0/\omega_0$ (observation vers l'avant) par $s = -\omega'_0/\omega_0$.

II-2.2 Expression du signal

Nous voulons maintenant déduire de la construction graphique une expression quantitative du signal. Dans le paragraphe précédent, nous avons construit la fréquence Ω émise par un atome de vitesse v (repérée plus commodément par la variable $u = \omega_0 v/c$). Il nous faut maintenant adopter la démarche inverse : pour une fréquence ω donnée, quelles sont les vitesses u des atomes émettant à cette fréquence ? Quelles sont les contributions de ces atomes au signal ? Les deux questions ainsi posées peuvent être résolues graphiquement.

Pour déterminer les vitesses des atomes émettant à une fréquence ω donnée, il suffit d'utiliser la construction graphique de la Fig II-2.2 en partant maintenant du point N : on trace la droite de pente s passant par le point N d'abscisse ω_L et d'ordonnée ω ; les points d'intersection $M_1, M_2, \dots$ de cette droite avec le diagramme ont pour abscisses $\omega_L + u_1, \omega_L + u_2, \dots$ (Fig II-2.4)

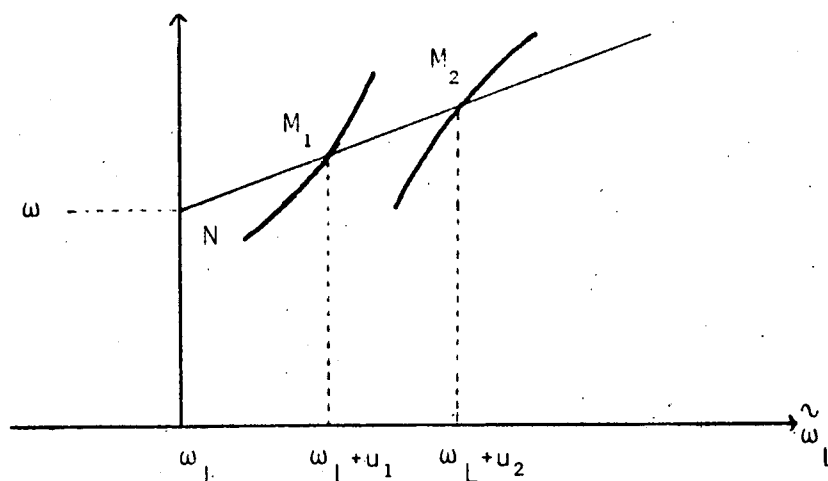


Fig II-2.4 : Construction graphique des vitesses u_1, u_2 , des atomes émettant à la fréquence ω .

Nous nous intéressons maintenant à la contribution au signal de l'une des solutions u_α de la construction graphique de la Fig II-2.4.

La grandeur physique importante est la densité spectrale $dW/d\omega$ où dW est le nombre total de photons émis dans l'intervalle $\omega, \omega + d\omega$ ($d\omega > 0$).

On détermine d'abord quels sont les atomes émettant dans cet intervalle (Fig II-2.5).

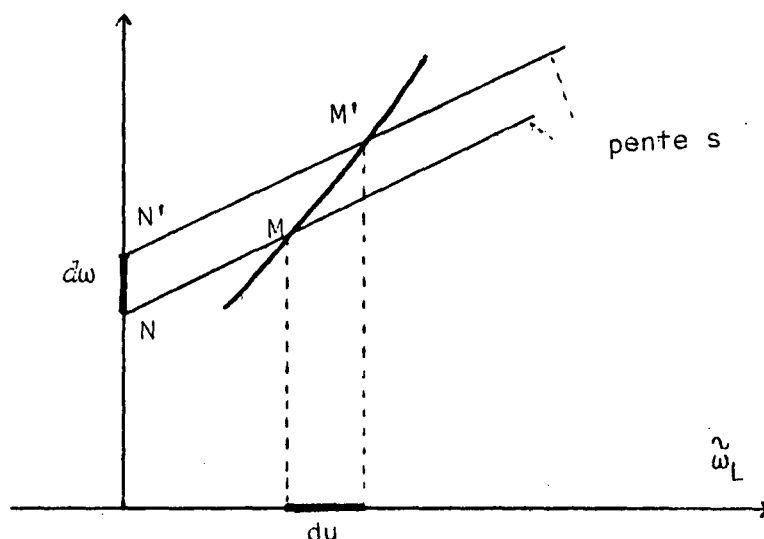


Fig II-2.5 : Construction graphique de l'intervalle du correspondant aux atomes émettant dans l'intervalle de fréquences $\omega, \omega + d\omega$ (dans le laboratoire). Ordonnée de N : ω , de N' : $\omega + d\omega$; les droites NM et $N'M'$ ont une pente s : abscisse de M : $\omega_L + u$; de M' : $\omega_L + u + du$.

Le facteur $|du/d\omega|$ caractérise le nombre de classes de vitesse émettant dans l'intervalle $d\omega$: nous l'appellerons facteur statistique. La figure II-2.6 (qui constitue un simple agrandissement de la Fig II-2.5) montre que

$$|d\omega| = |p - s| |du| \quad (II-2.7)$$

(où p est la pente du diagramme et s la pente des droites intervenant dans la construction graphique).

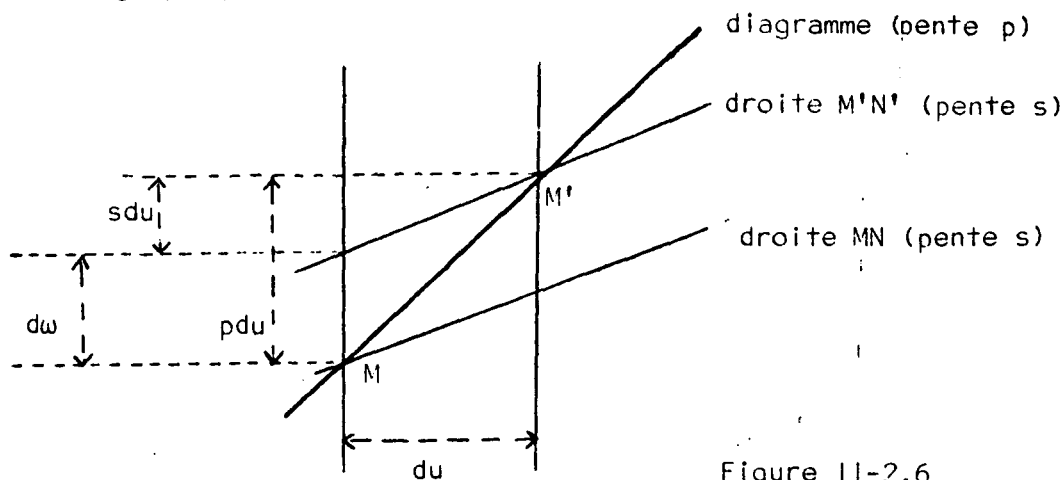


Figure II-2.6

On en déduit que le facteur statistique peut être mis sous la forme :

$$| du / d\omega | = 1 / | p-s | \quad (11-2.8)$$

La divergence du facteur statistique pour $p=s$ traduit le fait que des atomes de vitesses différentes émettent dans ce cas à la même fréquence dans le laboratoire.

Le nombre dN d'atomes émettant dans l'intervalle $\omega, \omega+d\omega$ est tout simplement le nombre d'atomes dont la vitesse est comprise entre u et $u+du$

$$dN = g(u) | du | \quad (11-2.9)$$

avec

$$g(u) = \frac{2N}{\Delta\sqrt{\pi}} \exp(-4u^2/\Delta^2) \quad (11-2.10)$$

(N est le nombre total d'atomes et Δ la largeur Doppler sur la transition ba de fréquence ω_0 (largeur totale à $1/e$) ; on rappelle en effet que $u=\omega_0 v/c$).

Appelons enfin I_α l'intensité totale émise dans la raie concernée par un atome de vitesse u_α . On obtient le nombre total dW de photons émis dans l'intervalle $\omega, \omega+d\omega$ en multipliant cette intensité I_α correspondant à un atome par le nombre dN d'atomes (eq. 11-2.9). La densité spectrale $dW/d\omega$ s'écrit ainsi comme un produit de trois facteurs:

$$dW/d\omega = I_\alpha g(u_\alpha) | du_\alpha / d\omega | \quad (11-2.11)$$

Finalement, le signal à la fréquence ω est la somme des contributions (données par 11-2.11) correspondant aux différentes solutions u_α de la construction graphique de la figure 11-2.4.

$$K_0(\omega) = \sum_{\alpha} I_\alpha g(u_\alpha) | du_\alpha / d\omega | \quad (11-2.12)$$

(les u_α et les I_α sont bien sur des fonctions de ω)

Les structures apparaissant dans le spectre $K_0(\omega)$ seront donc conditionnées par les variations de chacun des facteurs intervenant dans (11-2.12). Le facteur $g(u_\alpha)$ définit la région du diagramme de fréquence correspondant à des vitesses effectivement présentes dans la vapeur (intervalle centré en $\omega_L = \omega_L(u=0)$ et de largeur Δ). Les variations des deux autres facteurs I_α et $| du_\alpha / d\omega |$ sont dues à l'interaction atome-laser et se manifestent sur des largeurs de l'ordre de ω_1 (fréquence de Rabi caractérisant l'interaction : rappelons qu'elle est supposée plus grande que la largeur homogène). Enfin, pour

des valeurs de ω telles que la droite de la figure 11-2.4 soit tangente au diagramme, le facteur statistique $|du_\alpha/d\omega|$ diverge, ce qui entraîne d'après (11-2.12) une divergence du signal $K_0(\omega)$.

En fait, nous avons jusqu'à maintenant négligé la largeur des raies émises par un atome (largeur homogène). Une telle hypothèse n'est justifiée que tant que $K_0(\omega)$ varie sur des largeurs telles que Δ ou ω_1 plus grandes que la largeur homogène. Aux points où $K_0(\omega)$ diverge, elle n'est par contre pas du tout satisfaisante. Il faut alors tenir compte de la largeur des raies d'émission.

La méthode de l'atome habillé permet de calculer la largeur des raies. A chaque point M du diagramme de fréquence est associée une largeur $\gamma(M)$ (de la même façon qu'y est associée une intensité). On peut montrer dans de nombreux cas que la valeur de $\gamma(M)$ ne dépend en fait que de la pente p du diagramme au point M. Ceci est une conséquence du fait que le diagramme de fréquences contient des informations sur les états propres de l'atome habillé et pas seulement sur les fréquences d'émission (voir l'appendice A2). On en déduit le résultat remarquable que les points du diagramme responsables des divergences du facteur statistique ($p=s$) correspondent à une même largeur d'émission γ . L'effet de la largeur d'émission étant sensible seulement en ces points, on obtiendra une excellente approximation du spectre réel en considérant que tous les atomes émettent des raies de largeur γ . Le spectre $K_1(\omega)$ ainsi obtenu est simplement la convolution du spectre $K_0(\omega)$ calculé en supposant les raies d'émission de largeur nulle (expression 11-2.12) par une lorentzienne de largeur γ

$$K_1(\omega) = \int d\omega' K_0(\omega') L(\omega - \omega') \quad (11-2.13)$$

$$\text{avec} \quad L(\omega - \omega') = \frac{\gamma}{2\pi} / \left[(\omega - \omega')^2 + \frac{\gamma^2}{4} \right] \quad (11-2.14)$$

La convolution transforme les divergences de K_0 en structures étroites ayant une largeur de l'ordre de γ . Nous appellerons ces structures "résonances statistiques" puisqu'elles sont un souvenir des divergences du facteur statistique.

Nous avons donc obtenu une expression quantitative du signal reliée directement à la discussion graphique : expression (11-2.12) de K_0 si on ignore la largeur des raies d'émission, expression (11-2.13) de K_1 lorsqu'on en tient compte. Ces expressions font apparaître clairement les trois largeurs caractéristiques de variation du signal : la largeur Doppler Δ , la fréquence

de Rabi ω_1 caractéristique des résonances de saturation et la largeur homogène γ caractéristique des résonances statistiques.

Nous allons maintenant revenir à des expériences particulières, construire le diagramme de fréquence correspondant et en déduire, par la méthode graphique, l'allure des spectres. Les spectres que nous présentons dans cette deuxième partie comme illustrations de la discussion graphique ne sont pas calculés d'après l'expression (11-2.13) (convolution de K_0 par une lorentzienne de largeur γ), mais par une méthode équivalente, exposée dans la quatrième partie de la thèse et beaucoup mieux adaptée au calcul sur ordinateur.

CHAPITRE II-3

L'EFFET AUTLER TOWNES OPTIQUE EN VAPEUR

L'effet Autler Townes optique [Be] est la modification du spectre de fluorescence ou d'absorption relatif à une transition atomique lorsqu'un laser sature une autre transition couplée à la première [Fig II-3.1] .

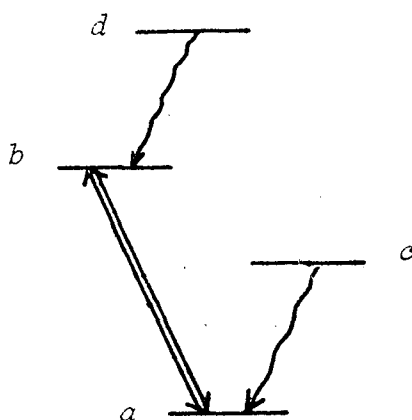


Fig II-3.1 : Deux exemples de mise en évidence sur des spectres de fluorescence de l'effet Autler Townes optique. La transition saturée par le laser est la transition ba . La détection sur $c \rightarrow a$ correspond à une configuration "repliée" et la détection sur $d \rightarrow b$ à une configuration "dépliée".

Lorsque l'effet Doppler est éliminé, par exemple dans une expérience sur jet atomique irradié et observé à angle droit [Be 2], le spectre de fluorescence (ou d'absorption) est un doublet, ce qui s'explique simplement par la méthode de l'atome habillé (Fig II-3.2). Considérons en effet les états habillés non perturbés de la Fig II-3.2a : $|a, n+1\rangle$ et $|b, n\rangle$ sont quasi dégénérés puisque le laser est quasi résonnant sur la transition ba ; $|c, n+1\rangle$ est couplé à

$|a, n+1\rangle$ par le dipole atomique. Lorsqu'on diagonalise l'interaction atome-laser dans la multiplicité ($|a, n+1\rangle, |b, n\rangle$), on obtient les deux états propres $|1, n\rangle$ et $|2, n\rangle$ contenant tous les deux une certaine proportion de $|a, n+1\rangle$ et par conséquent couplés tous les deux à $|c, n+1\rangle$ par le dipole atomique (Fig II-3.2b).

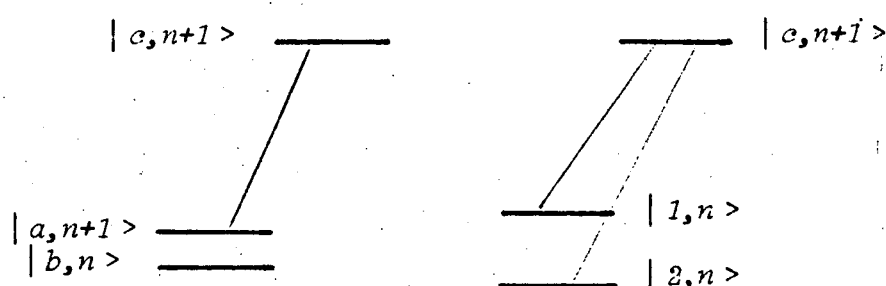


Fig II-3.2 : Interprétation du doublet Autler Townes.

Il y a donc émission de photons sur les deux transitions $|c, n+1\rangle \rightarrow |1, n\rangle$ et $|c, n+1\rangle \rightarrow |2, n\rangle$ ce qui explique la structure en doublet du spectre de fluorescence (ou d'absorption).

De nombreux travaux [Be 3] ont été consacrés à l'effet Autler Townes optique en vapeur. Dans la limite Doppler (c'est-à-dire si $\omega_l \ll \Delta$), il subsiste une structure de doublet après la moyenne sur les vitesses à condition que la fréquence ω_0^l de la transition de détection (ca ou db sur la Fig II-3.1) soit plus petite que la fréquence ω_0 de la transition saturée ba et que l'on observe le spectre dans la direction avant pour une configuration repliée (détection sur ca) ou dans la direction arrière pour une configuration dépliée (détection sur db).

Le but de ce chapitre est de montrer d'abord que la discussion graphique introduite précédemment (§ II-2) permet de comprendre très simplement ces conditions (§ II-3.2). Nous verrons aussi qu'elle permet d'étudier sur le même diagramme de fréquences des effets nouveaux. On peut ainsi prévoir ce que

deviendraient les spectres dans le cas d'une excitation ultra intense ($\omega_1 \gg \Delta$) On obtient ainsi deux résultats spectaculaires :

- la possibilité d'observer pour $\omega_1 \gg \Delta$ un doublet dont les deux composantes ont pour largeurs respectives Δ et γ ; les deux composantes ayant des poids du même ordre, la composante fine est beaucoup plus grande que la composante large dans un rapport de l'ordre de Δ/γ (§ 11-3.3).
- l'existence dans la région intermédiaire ($\omega_1 \sim \Delta$) de structures à trois ou quatre maxima plus compliquées que le doublet habituel (§ 11-3.4) et assez inattendues pour un système aussi simple que celui de la Figure 11-3.1 (a,b,c et d sont supposés non dégénérés).

Pour simplifier l'exposé, nous limiterons la discussion dans ce chapitre aux cas où la population du niveau émetteur n'est pas perturbée par l'excitation laser (c'est-à-dire aux cas décrits par la Fig 11-3.1 où les niveaux émetteurs c ou d ne sont pas couplés au laser). Notons toutefois que l'on peut aussi traiter par la méthode graphique des situations où les effets de population jouent un rôle important.

11-3.1 : Le diagramme de fréquence

Nous nous intéressons maintenant au diagramme de fréquence correspondant à la configuration repliée de la figure 11-3.1 (saturation de ba, détection sur ca). On peut calculer facilement les énergies des états propres $|1,n\rangle$ et $|2,n\rangle$ de la figure 11-3.2 (voir le § 1-1.2) On en déduit les fréquences d'émission dans son référentiel propre d'un atome "voyant" le laser à la fréquence $\tilde{\omega}_L$:

$$\tilde{\Omega} = \omega_0' + \frac{1}{2} (\tilde{\omega}_L - \omega_0) - \frac{\epsilon}{2} ((\tilde{\omega}_L - \omega_0)^2 + \omega_1^2)^{1/2} \quad (11-3.1)$$

($\epsilon=1$ pour $|c,n+1\rangle \rightarrow |1,n\rangle$; $\epsilon=-1$ pour $|c,n+1\rangle \rightarrow |2,n\rangle$). Le diagramme comporte deux branches ($\epsilon=\pm 1$) que l'on peut décrire par les deux équations (11-3.1) ou par une seule équation déduite de (11-3.1) :

$$(\tilde{\Omega} - \omega_0' - \frac{1}{2} (\tilde{\omega}_L - \omega_0))^2 = \frac{1}{4} ((\tilde{\omega}_L - \omega_0)^2 + \omega_1^2) \quad (11-3.2)$$

$$\text{ou } (\tilde{\Omega} - \omega_0') (\tilde{\Omega} - \omega_0' - (\tilde{\omega}_L - \omega_0)) = \omega_1^2/4 \quad (11-3.3)$$

Le diagramme de fréquences est l'ensemble des points M dont l'abscisse $\tilde{\omega}_L$ et l'ordonnée $\tilde{\Omega}$ satisfont à l'équation (11-3.3) : c'est une hyperbole représentée sur la fig. 11-3.3 .

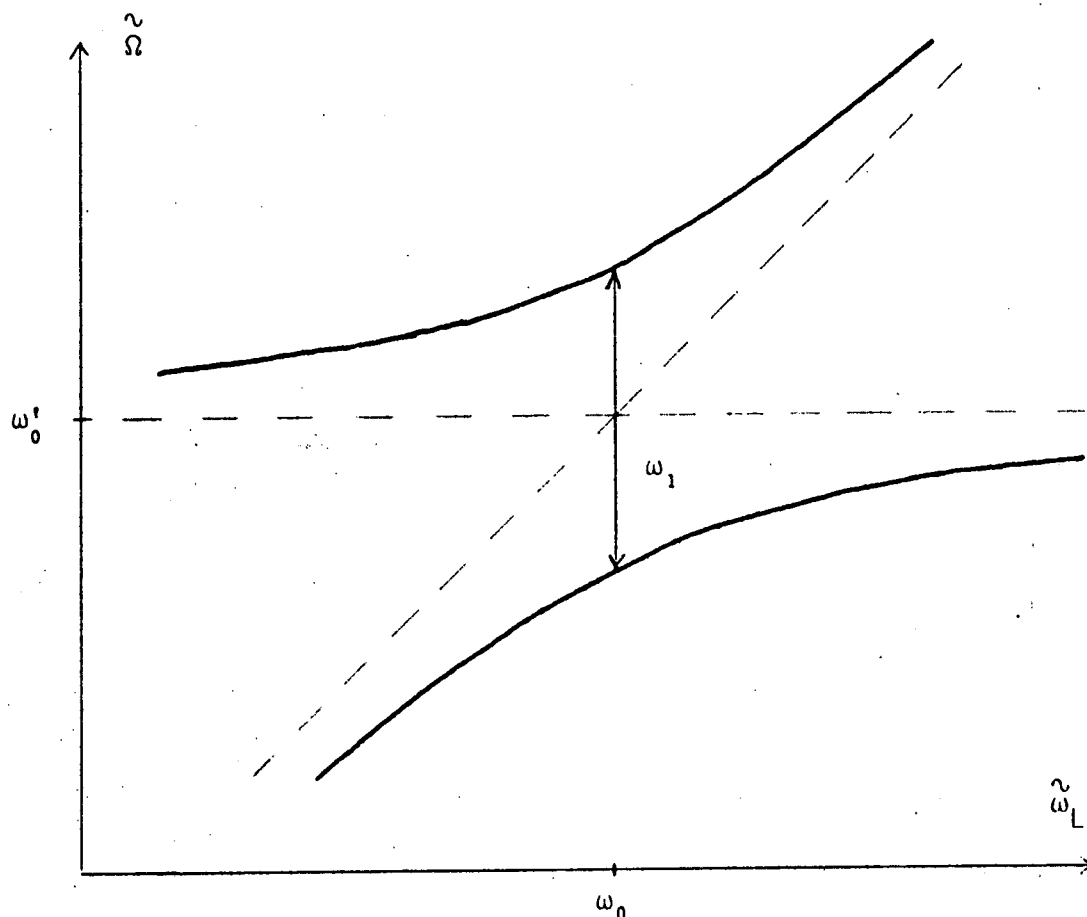


Fig II-3.3 : Le diagramme de fréquence correspondant à l'effet Autler Townes optique dans le cas d'une configuration repliée.

Les deux asymptotes de l'hyperbole ont pour équations

$$\tilde{\Omega} = \omega'_0 \quad (II-3.4)$$

et
$$\tilde{\Omega} = \omega'_0 + (\tilde{\omega}_L - \omega_0) \quad (II-3.5)$$

On peut donner de ces deux asymptotes une interprétation perturbative très simple : l'asymptote horizontale correspond à l'émission d'un photon à la fréquence atomique non perturbée ($\tilde{\Omega} = \omega'_0$ voir Fig II-3.4a) : l'asymptote de pente 1 correspond à un processus Raman inverse où l'atome, partant de c, émet un photon de fluorescence $\tilde{\Omega}$ puis absorbe un photon laser $\tilde{\omega}_L$ pour arriver en b (Fig II-3.4b) ; la relation de conservation de l'énergie ($\tilde{\omega}_L - \tilde{\Omega} = \omega_0 - \omega'_0$) permet de retrouver l'équation (II-3.5) de l'asymptote.

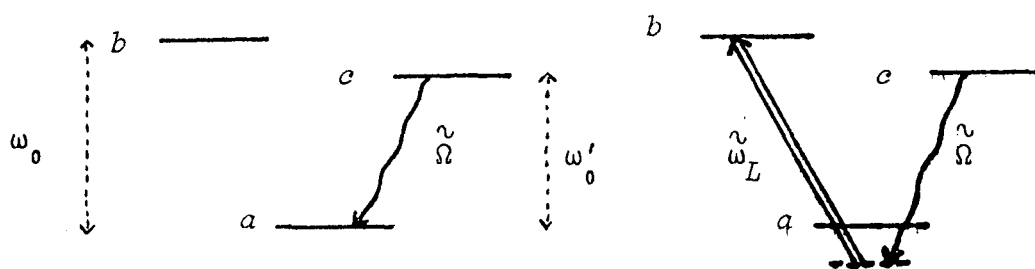


Fig II-3.4 : Interprétation perturbative des deux asymptotes

La discussion ci-dessus nous permet d'interpréter le diagramme de fréquence (hyperbole de la Fig II-3.3) comme résultant d'un "anticroisement" (du au couplage atome-laser) entre les deux processus de la Fig II-3.4. Lorsque l'excitation est résonnante dans le référentiel de l'atome ($\omega_L = \omega_0$) la distance entre les deux branches de l'hyperbole est égale à la fréquence de Rabi ω_1 (Fig II-3.3), ce qui correspond bien au fait que la distance entre les deux états propres de la Fig II-3.2 est alors égale à ω_1 .

Le diagramme de fréquence est le même pour toutes les configurations repliées (l'interprétation étant la même que ci-dessus). Par contre le diagramme correspondant aux configurations dépliées (par exemple voir Fig II-3.1 : saturation de ba, détection sur db) est différent (Fig II-3.5a). En effet, l'asymptote horizontale correspond encore à l'émission de photons à la fréquence atomique non perturbée (Fig II-3.5b), mais l'autre asymptote correspond maintenant à un processus à deux photons (Fig II-3.5c) et a donc une pente -1 puisque la conservation de l'énergie s'écrit ;

$$\begin{aligned}\tilde{\Omega} + \tilde{\omega}_L &= \omega'_0 + \omega_0 \\ \tilde{\Omega} &= \omega'_0 - (\tilde{\omega}_L - \omega_0)\end{aligned}$$

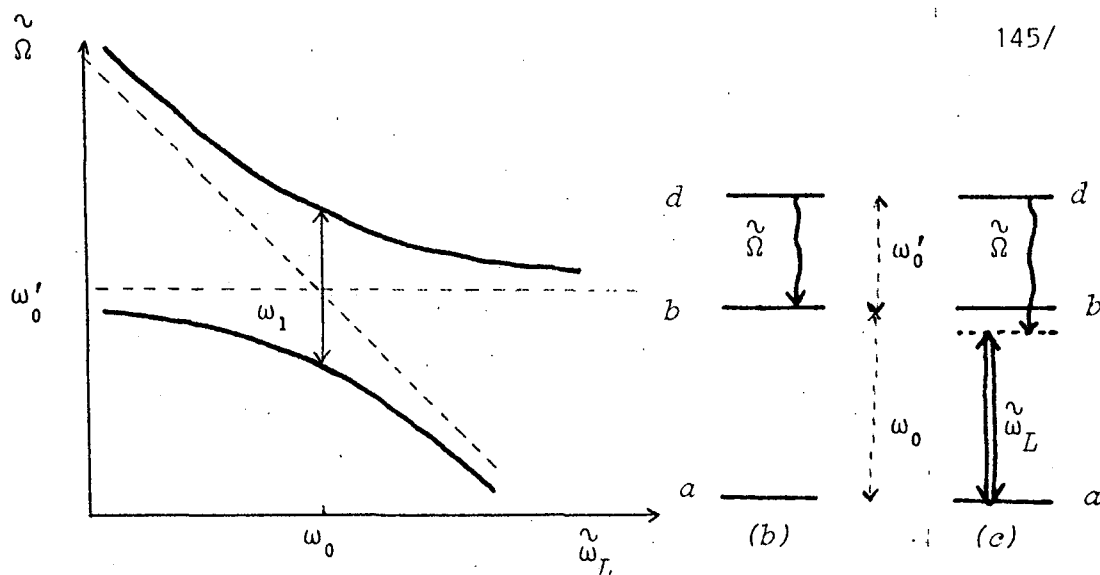


Fig. II-3.5 : Le diagramme de fréquence correspondant à une configuration dépliée (a). Interprétation perturbative des deux asymptotes (b et c)

Remarque :

Le diagramme de fréquence donne les fréquences d'émission $\tilde{\Omega}$ de l'atome dans son référentiel propre en fonction de la fréquence apparente $\tilde{\omega}_L$ du laser dans ce référentiel. Il est intéressant de remarquer dès maintenant que ce diagramme contient des informations supplémentaires et que, par exemple, on peut lire directement sur le diagramme l'intensité totale de la raie d'émission correspondant à un point du diagramme. Considérons en effet un point M du diagramme d'abscisse $\tilde{\omega}_L$ et d'ordonnée $\tilde{\Omega}$; il correspond à une transition entre états habillés $|c, n+1\rangle \rightarrow |i, n\rangle$ (Fig II-3.2) avec $i=1$ ou 2 selon que le point M est respectivement sur la branche inférieure ou supérieure du diagramme (voir l'équation II-3.1). L'intensité I émise sur cette raie est proportionnelle d'une part à la population π_c du niveau supérieur et d'autre part aux taux de transition spontanée du niveau supérieur $|c, n+1\rangle$ vers le niveau inférieur $|i, n\rangle$ (Fig II-3.2)

$$I \sim | \langle i, n | D | c, n+1 \rangle |^2 \pi_c \sim | \langle i, n | a, n+1 \rangle |^2 | d_{ca} |^2 \pi_c \quad (\text{II-3.6})$$

Pour calculer l'intensité I , il suffit donc de connaître la proportion de $|a, n+1\rangle$ dans $|i, n\rangle$. Or, on démontre dans l'appendice A2 la relation suivante entre cette proportion et la pente p du diagramme au point M :

$$| \langle i, n | a, n+1 \rangle |^2 = 1 - p \quad (\text{II-3.7})$$

On retiendra donc pour la suite que

$$I \sim (1 - p) \quad (\text{II-3.8})$$

Un autre résultat sera utile ; notons $\tilde{\Omega}_1$ et $\tilde{\Omega}_2$ les ordonnées des deux points M_1 et M_2 du diagramme ayant pour abscisse $\tilde{\omega}_L$. On déduit de (II-3.1.) que

$$\tilde{\Omega}_1 + \tilde{\Omega}_2 = 2\omega'_0 + \tilde{\omega}_L - \omega_0 \quad (\text{II-3.9})$$

En dérivant (II-3.6) par rapport à $\tilde{\omega}_L$, on obtient

$$p_1 + p_2 = 1 \quad (\text{II-3.10})$$

où $p_1 = d\tilde{\Omega}_1/d\tilde{\omega}_L$ est la pente du diagramme au point M_1 (abscisse $\tilde{\omega}_L$, ordonnée $\tilde{\Omega}_1$) et p_2 la pente au point M_2 . On peut remarquer que l'on aurait pu aussi déduire ce résultat de (II-3.7) et de la relation de fermeture

$$|<1,n | a_{n+1}>|^2 + |<2,n | a_{n+1}>|^2 = 1 \quad (\text{II-3.11})$$

Une conséquence de cette remarque est que la somme des poids émis dans les deux composantes du doublet est la même qu'en l'absence d'irradiation laser. Le phénomène de compensation consiste donc en une simple redistribution en fréquence de la fluorescence de la vapeur.

II-3.2 : Condition d'observation d'un doublet à la limite Doppler ($\omega_L \ll \Delta$)

Ayant obtenu le diagramme de fréquence correspondant à l'effet Autler Townes optique, on peut maintenant discuter l'allure des spectres grâce à la construction graphique du chapitre II-2. Deux cas se présentent alors (la discussion correspond à une configuration repliée, c'est-à-dire au diagramme de la Fig. II-3.3).

Premier cas $0 < s < 1$

Le premier cas correspond à une observation vers l'avant ($s > 0$) sur une transition de fréquence ω'_0 plus petite que la fréquence ω_0 de la transition saturée ($s = \omega'_0/\omega_0 < 1$). Certaines droites de pente s n'ont aucun point d'intersection avec l'hyperbole (Fig II-3.6).

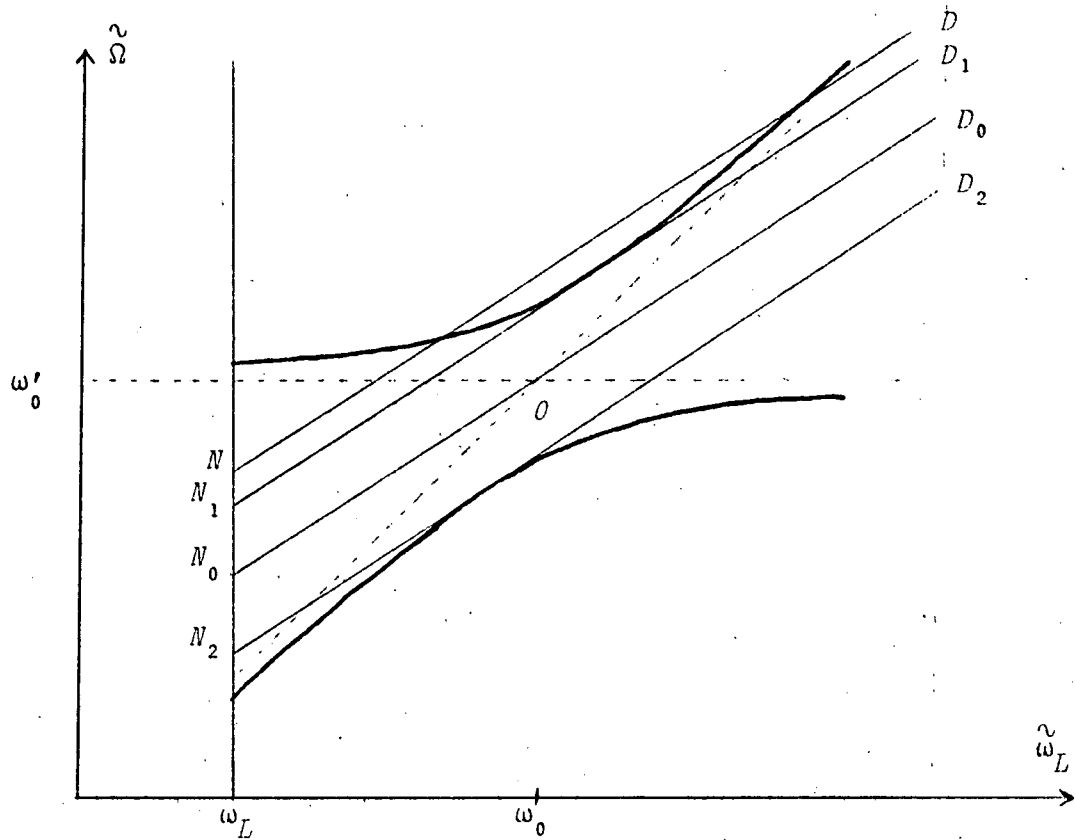


Fig II-3.6 : La construction graphique dans le cas $0 < s < 1$

On a représenté sur la Figure II-3.6 la droite D_0 de pente s passant par le centre de symétrie O du diagramme, les droites D_1 et D_2 de pente s tangentes à l'hyperbole. Si une droite de pente s est comprise entre D_1 et D_2 (par exemple D_0 sur la figure), elle ne coupe pas l'hyperbole : aucun atome n'émet à la fréquence considérée. Si une droite de pente s est située au dessus de D_1 (D sur la figure) ou au dessous de D_2 , elle coupe l'hyperbole en deux points ; il existe des atomes émettant à la fréquence considérée (ordonnée du point N sur la figure).

Deux points importants apparaissent clairement sur la Figure II-3.6 : il y a un trou dans le spectre émis par la vapeur, correspondant aux points compris entre N_1 et N_2 sur la droite d'abscisse ω_L ; ce trou est limité par deux résonances statistiques correspondant aux points N_1 et N_2 (D_1 et D_2 étant tangentes à l'hyperbole, de nombreuses classes de vitesse émettent aux fréquences correspondant à N_1 et N_2).

Nous reviendrons plus loin sur l'allure du spectre après avoir étudié les autres cas

Second cas $s < 0$ ou $s > 1$

Le second cas correspond à une observation vers l'arrière ($s < 0$) ou à une observation vers l'avant sur une transition de fréquence ω'_0 plus grande

que la fréquence ω_0 de la transition saturée ($s > 1$). Dans ce cas, toutes les droites de pente s coupent les deux branches de l'hyperbole (Fig II-3.7)

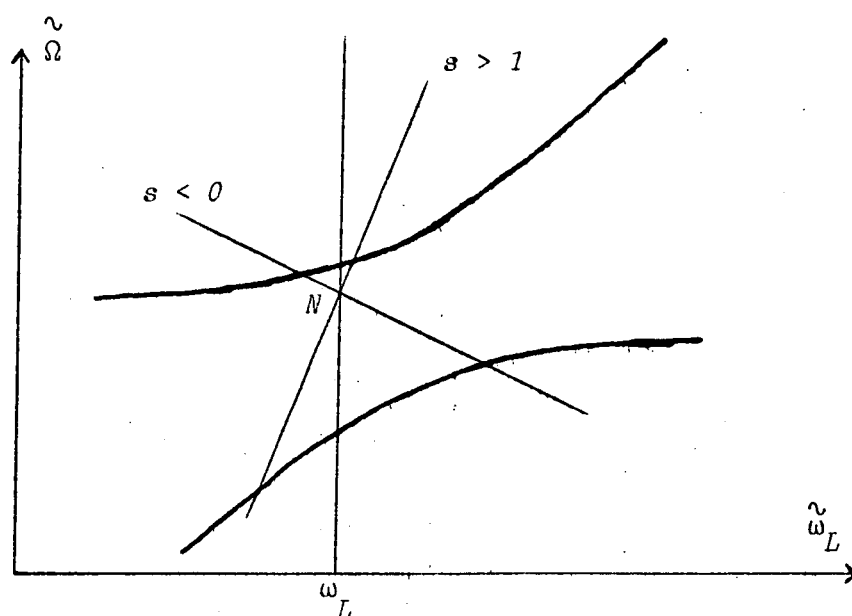


Fig II-3.7

Il n'y a ni trou dans le spectre, ni résonance statistique. De plus, on peut montrer (Appendice A2) que le spectre de fluorescence est alors le même qu'en l'absence d'irradiation (si $\omega_L \ll \Delta$ et si on est dans le cas étudié où la population contribuant au signal n'est pas perturbée par le laser). Chaque atome individuel émet un doublet Autler Townes mais la superposition des doublets des atomes de vitesses différentes redonne une gaussienne ayant la largeur Doppler.

Configuration dépliée

Pour une configuration dépliée, le diagramme est celui de la figure II-3.5. La discussion est la même que pour une configuration repliée en échangeant les rôles de l'observation vers l'avant et de l'observation vers l'arrière (c'est-à-dire en changeant s en $-s$). On observe un doublet pour $-1 < s < 0$ c'est-à-dire pour une observation vers l'arrière ($s < 0$) et pour $\omega_0' < \omega_0$ ($s = -\omega_0'/\omega_0 > -1$)

Allure du spectre

La forme du spectre de fluorescence peut être calculée exactement (par la méthode développée au § II-2, ou par la méthode algébrique, équivalente

à la précédente et qui sera exposée dans la quatrième partie). Nous avons représenté sur la Fig II-3.8 les spectres obtenus pour deux valeurs différentes de la largeur homogène .

La méthode graphique permet de comprendre, avec des arguments simples, deux des principales caractéristiques de ces spectres , la distance entre les deux maxima et la hauteur des résonances statistiques.

La largeur du trou est déterminée principalement par la distance entre les deux tangentes à l'hyperbole de pente s (D_1 et D_2 sur la Fig. II-3.6). Cette distance peut être calculée simplement à partir de l'équation (II-3.3) de l'hyperbole : on la trouve égale à $2\omega_1\sqrt{s(1-s)}$. En fait, la distance entre les deux maxima est légèrement plus grande que $2\omega_1\sqrt{s(1-s)}$ (Fig II-3.8), ce qui se comprend bien lorsqu'on tient compte de la largeur homogène γ . En effet, chaque point du diagramme émet une lorentzienne de largeur γ dont le centre est toujours au dessus de N_1 ou au dessous de N_2 (Fig II-3.6). Les maxima du signal sont donc des points situés à une distance de l'ordre de γ respectivement au dessus de N_1 et au dessous de N_2 . Un calcul plus complet (appendice B de la thèse de 3ème cycle de F. Hoffbeck) permet de montrer que pour $\gamma \ll \omega_1 \ll \Delta$, la distance entre les deux maxima est $2\omega_1\sqrt{s(1-s)} + \gamma/\sqrt{3}$.

Par le même calcul, on montre que la hauteur des résonances (rapportée à la hauteur du signal en l'absence d'irradiation) varie comme $(\omega_1/\gamma)^{1/2}$ (pour $\gamma \ll \omega_1 \ll \Delta$) ; ceci apparaît en particulier sur la Figure II-3.8 : le rapport des deux valeurs de γ est 4 et le rapport des hauteurs environ 2. On peut comprendre simplement ce résultat par le raisonnement suivant : le nombre d'atomes émettant dans une largeur γ autour de la résonance est proportionnel à l'intervalle Δu sur l'axe des abscisses (qui est aussi l'axe des vitesses) correspondant à des atomes émettant dans l'intervalle N_1 N_1' de largeur γ (Fig II-3.9).

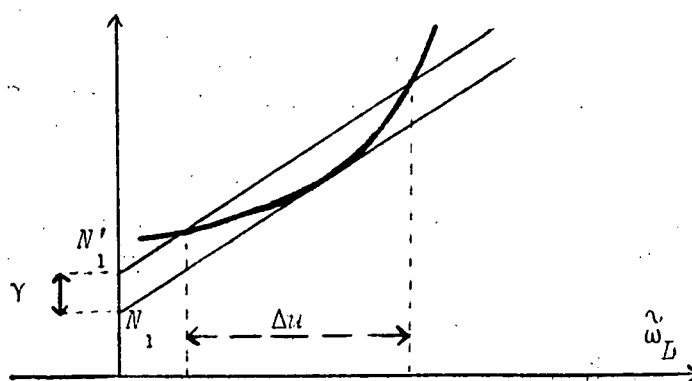


Fig II-3.9 : Intervalle Δu sur l'axe des vitesses correspondant à des atomes émettant dans une largeur γ autour de la résonance

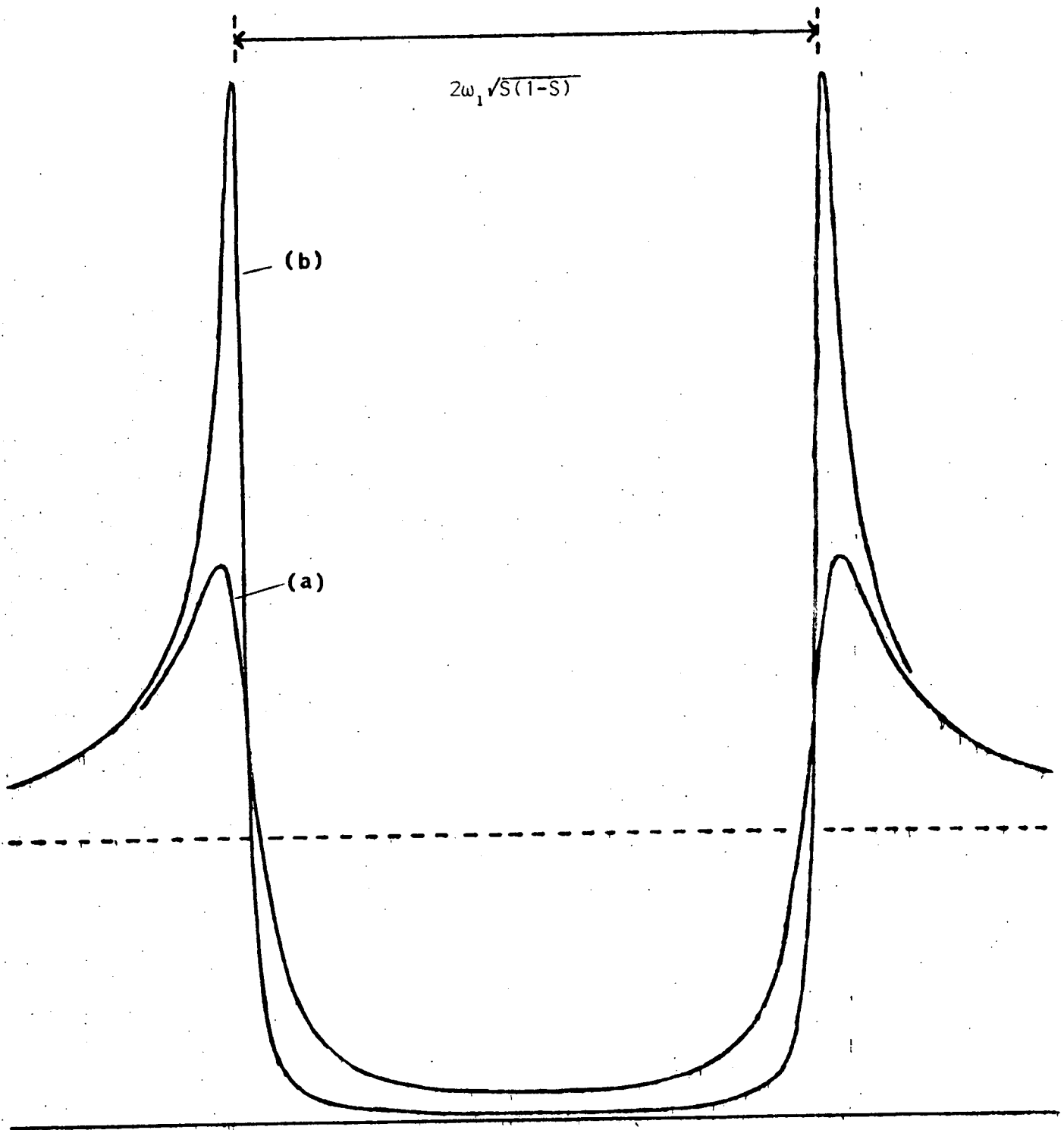


Fig II-3.8 : Spectres de fluorescence calculés pour $\omega_1 \ll \Delta$ et $0 < S < 1$. Les deux spectres correspondent à $s = 0,5$; $\gamma = \omega_1/10$ (a) et $\gamma = \omega_1/40$ (b). Le trait pointillé représente le signal en l'absence d'irradiation laser.

On peut calculer cet intervalle Δu en remplaçant l'hyperbole au voisinage de la résonance par une parabole dont la courbure est déterminée par le paramètre ω_1 (Fig 11-3.9)

$$\gamma \sim (\Delta u)^2 / \omega_1 \quad (11-3.12)$$

$$\Delta u \sim (\omega_1 \gamma)^{1/2} \quad (11-3.13)$$

Pour obtenir la hauteur de la résonance rapportée au signal en l'absence d'irradiation, il suffit maintenant de diviser Δu par l'intervalle de l'axe des vitesses correspondant à des atomes qui émettraient entre N_1 et N_1' en l'absence d'irradiation : cet intervalle est bien entendu de l'ordre de γ et on obtient finalement pour la hauteur de la résonance

$$\frac{\Delta u}{\gamma} \sim \left(\frac{\omega_1}{\gamma} \right)^{1/2} \quad (11-3.14)$$

Nous avons supposé dans ce paragraphe $\omega_1 \ll \Delta$. Ceci signifie que le facteur gaussien de distribution des vitesses ne varie pas d'un point à l'autre sur la Fig 11-3.6. Quand on modifie la fréquence ω_L du laser dans le laboratoire, le seul effet est alors de déplacer en bloc le spectre de fluorescence, la fréquence centrale du spectre étant égale à l'ordonnée du point N_0 (Fig 11-3.6).

$$\Omega(N_0) = \omega_0' - s(\omega_L - \omega_0) \quad (11-3.15)$$

Si par contre ω_1/Δ n'est plus tout petit devant 1, le facteur gaussien de distribution des vitesses $\exp(-4(\tilde{\omega}_L - \omega_L)^2/\Delta^2)$ n'est plus le même pour tous les points du diagramme. En particulier si $\omega_L \neq \omega_0$, il n'est plus le même pour les deux points de la Fig 11-3.6 qui donnent naissance aux deux résonances statistiques. Ces deux résonances n'ont plus la même hauteur : le spectre est dissymétrique. Une telle dissymétrie a été observée expérimentalement [Bd 4]. Nous allons voir maintenant que si l'on savait réaliser expérimentalement des fréquences de Rabi ω_1 plus grandes que la largeur Doppler Δ , on pourrait observer des asymétries beaucoup plus spectaculaires.

11-3.3 Excitation ultra-intense ($\omega_1 \gg \Delta$)

L'axe des abscisses du diagramme de fréquence est aussi l'axe des vitesses des atomes ($\tilde{\omega}_L = \omega_L + u$ avec $u = \omega_0 v/c$). Le domaine correspondant à des

vitesses effectivement présentes dans la vapeur correspond donc à un intervalle sur l'axe des abscisses centré sur ω_L et de largeur Δ (voir Fig II-3.10). Si la fréquence de Rabi ω_1 est beaucoup plus grande que Δ , les deux branches du diagramme peuvent être assimilées dans cet intervalle à deux segments de droite portés par les tangentes à l'hyperbole en A et en B (Fig II-3.10)

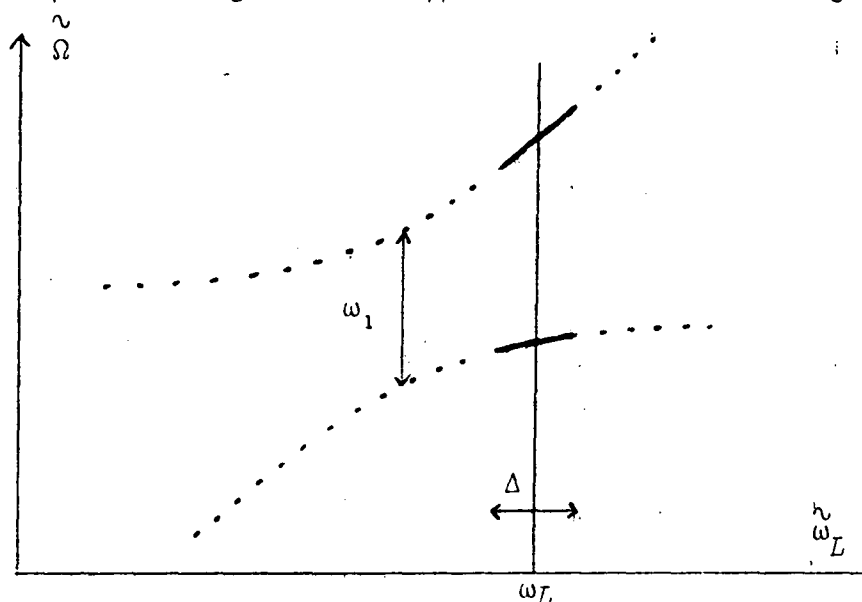


Fig II-3.10 : Diagramme de fréquence dans le cas $\omega_1 \gg \Delta$

Autrement dit, pour un atome de vitesse u , on peut, à la limite $\omega_1 \gg \Delta$, écrire la fréquence $\tilde{\Omega}$ émise dans son référentiel propre sous la forme

$$\tilde{\Omega} = \Omega_A + p_A u \quad (11-3.16)$$

où Ω_A est l'ordonnée du point A d'intersection du diagramme avec la verticale d'abscisse ω_L et p_A la pente de la tangente au diagramme en A. La fréquence Ω émise dans le référentiel du laboratoire vaut donc :

$$\Omega = \Omega_A + (p_A - s) u \quad (11-3.17)$$

(de même pour l'autre branche en remplaçant Ω_A et p_A par Ω_B et p_B)

Quand on fait varier ω_L (c'est-à-dire quand la droite verticale de la Figure II-3.10 se déplace), la pente p_A varie de 0 à 1. Supposons alors que l'on ait ajusté ω_L de façon à ce que p_A soit égale à s . On obtient alors une

compensation totale de l'effet Doppler par les déplacements lumineux : tous les atomes de la cellule émettent à la même fréquence Ω_A dans le laboratoire et il y a dans le spectre de fluorescence de la vapeur une raie très fine (de largeur γ) centrée en Ω_A .

Il y a bien sur dans le spectre une autre raie centrée en Ω_B , dont la largeur est de l'ordre de Δ ; plus précisément, la fréquence émise autour de Ω_B par un atome de vitesse u est $\Omega_B + (p_B - s)u$ (voir II-3.17). La répartition de la valeur de u étant une gaussienne centrée en $u=0$ et de largeur Δ (largeur totale à $1/e$; voir l'expression II-2.10), on en déduit que la raie centrée en Ω_B est une gaussienne de largeur

$$|p_B - s| \Delta = |1-2s| \Delta \quad (\text{II-3.18})$$

(on a utilisé la relation $p_B = 1-s$ déduite de $p_A = s$ et $p_A + p_B = 1$ voir II-3.10).

L'allure du spectre est représentée sur la Figure II-3.11 : on a utilisé (II-3.8) pour relier les poids I_A et I_B des deux raies aux pentes p_A et p_B ($I_A \sim (1-p_A) \sim (1-s)$; $I_B \sim (1-p_B) \sim s$)

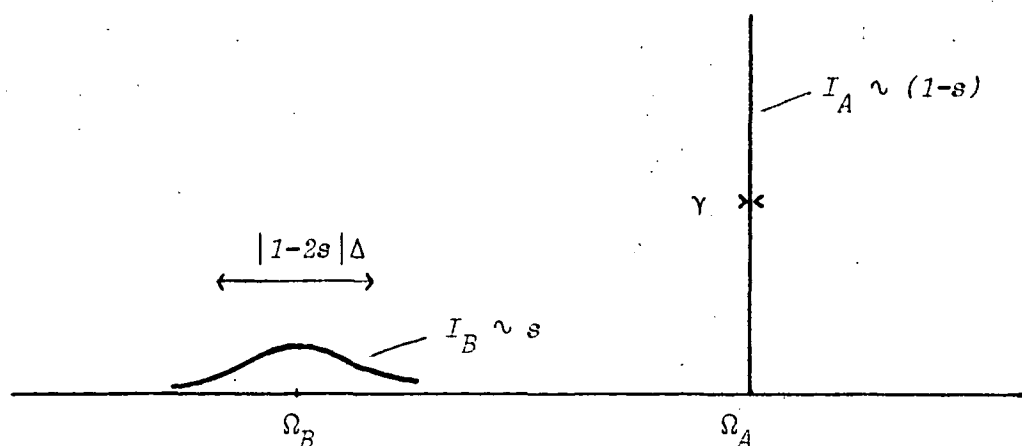


Fig II-3.11 Le spectre Autler Townes pour $\omega_L \gg \Delta$ et pour une fréquence laser ω_L telle que la pente p_A soit égale à s .

Les poids des deux raies sont du même ordre; la raie fine de largeur γ , est donc beaucoup plus haute que la raie large dans un rapport de l'ordre de Δ/γ . Ce rapport peut atteindre ou même dépasser 100 et l'asymétrie du spectre est donc très importante, beaucoup plus grande que les asymétries qui ont déjà été observées avec des fréquences de Rabi ω_1 plus petites que la largeur Doppler [Bd 4]

Remarques :

(i) Si la fréquence laser ω_L n'est pas ajustée à la bonne valeur pour que p_A (ou p_B) soit égal à s , les deux raies centrées en Ω_A et Ω_B sont deux gaussiennes de largeurs respectives $|p_A - s|\Delta$ et $|p_B - s|\Delta$. On peut noter le fait remarquable que le diagramme de fréquence fournit ainsi, pour toute valeur de ω_L , les centres Ω_A et Ω_B des deux raies, leurs largeurs $|p_A - s|\Delta$ et $|p_B - s|\Delta$ et leurs poids $(1 - p_A)$ et $(1 - p_B)$.

(ii) Dans le cas particulier $s = 1/2$, la compensation se produit pour $\omega_L = \omega_0$ et les deux raies en Ω_A et Ω_B ont alors toutes deux pour largeur γ (en effet pour $\omega_L = \omega_0$ $p_A = p_B = 1/2$)

(iii) En fait, même si l'intervalle Δ de la Figure II-3.10 est plus petit que ω_1 , l'hyperbole s'écarte légèrement de la droite sur cet intervalle. La courbure de l'hyperbole étant déterminée par ω_1 , on peut estimer cet écart à Δ^2/ω_1 (voir l'équation II-3.12). Pour que l'on puisse considérer que tous les atomes émettent à la même fréquence Ω_A , il faut que cet écart soit inférieur à la largeur homogène.

$$\Delta^2/\omega_1 \ll \gamma \quad (II-3.19)$$

C'est-à-dire :

$$\omega_1 \gg \Delta^2/\gamma \quad (II-3.20)$$

La condition (II-3.20) est donc la condition de compensation totale ; nous constatons que cette condition est d'autant plus sévère que la largeur homogène est plus petite.

11-3.4 Existence de structures plus complexes dans la région intermédiaire ($\omega_1 \sim \Delta$)

Dans ce dernier paragraphe, nous nous intéressons à la région intermédiaire $\omega_1 \sim \Delta$ et nous montrons que l'utilisation du diagramme de fréquence permet alors de prévoir des structures plus complexes rappelant à la fois celles observées pour $\omega_1 \gg \Delta$ et celles observées pour $\omega_1 \ll \Delta$.

Considérons en effet le diagramme de la Fig 11-3.12. Les points C et D sont les points du diagramme où la tangente a une pente p égale à s ; les points E et F donnent donc (par leurs ordonnées Ω_E et Ω_F) les positions des deux résonances de compensation. Les points A et B sont les points du diagramme d'abscisse ω_L .

Lorsque $\omega_1 \ll \Delta$, le spectre est un doublet dont les deux composantes sont les deux résonances statistiques situées en Ω_E et Ω_F (§ 11-3.2). L'intervalle de largeur Doppler (représenté au bas de la Fig 11-3.12) contient les abscisses des deux points C et D qui donnent naissance aux résonances statistiques. Les points A et B contribuent dans les flancs du signal de part et d'autre des résonances statistiques.

Pour $\omega_1 \gg \Delta$, le spectre est encore un doublet, mais dont les deux composantes sont maintenant deux gaussiennes centrées en Ω_A et Ω_B et de largeur $|1/2 - s| \Delta$ (puisque $p_A = p_B = 1/2$ dans le cas représenté sur la Figure 11-3.12); l'intervalle de largeur Δ ne contient plus les points C et D (Fig 11-3.12) et les résonances statistiques ont donc disparu (le nombre d'atomes correspondant aux points C et D est négligeable).

On peut donc prévoir que le passage progressif du doublet (Ω_E, Ω_F) pour $\omega_1 \ll \Delta$ au doublet (Ω_A, Ω_B) pour $\omega_1 \gg \Delta$ doit se traduire dans la région intermédiaire par l'existence de spectres présentant un maximum aux quatre fréquences $\Omega_A, \Omega_B, \Omega_E$ et Ω_F ; bien que petit, le facteur Doppler n'est plus négligeable aux points C et D (Fig 11-3.12) et les résonances de compensation subsistent donc en Ω_E et Ω_F (provenant des atomes en C et D) et se superposent aux structures larges centrées en Ω_A et Ω_B (provenant des atomes du centre de la distribution de vitesse). On prévoit ainsi une structure en "quadruplet" du spectre.

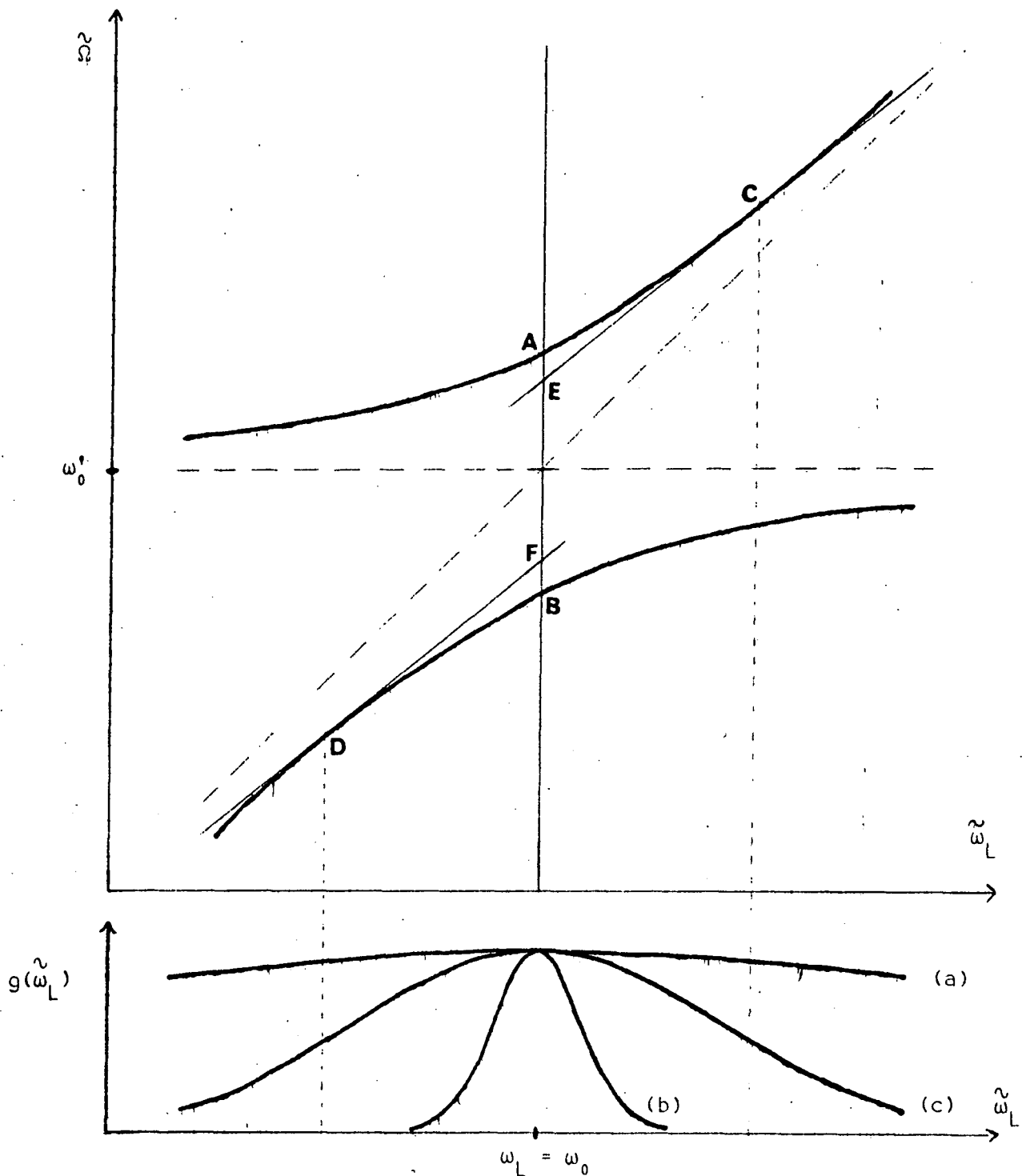


Fig 11-3,12 : Le diagramme de fréquence et la construction graphique en supposant $\omega_L = \omega_0$ et $s \neq 1/2$ (si s était égal à $1/2$, les points A, C et E d'une part, B, D et F d'autre part seraient confondus). On a représenté aussi (partie inférieure de la figure) la fonction de distribution des vitesses dans les trois cas suivants

- (a) $\omega_1 \ll \Delta$: les abscisses de C et D sont dans le centre de la distribution des vitesses
- (b) $\omega_1 \gg \Delta$: le nombre d'atomes dont la vitesse correspond à l'abscisse de C est négligeable.
- (c) $\omega_1 \sim \Delta$: l'abscisse de C est dans le flanc de la distribution des vitesses.

Il est possible aussi de prévoir des structures en "triplet". Supposons par exemple que l'on ait choisi la fréquence ω_L du laser de façon à ce que la pente p_A soit égale à s . On obtient ainsi la figure II-3.13.

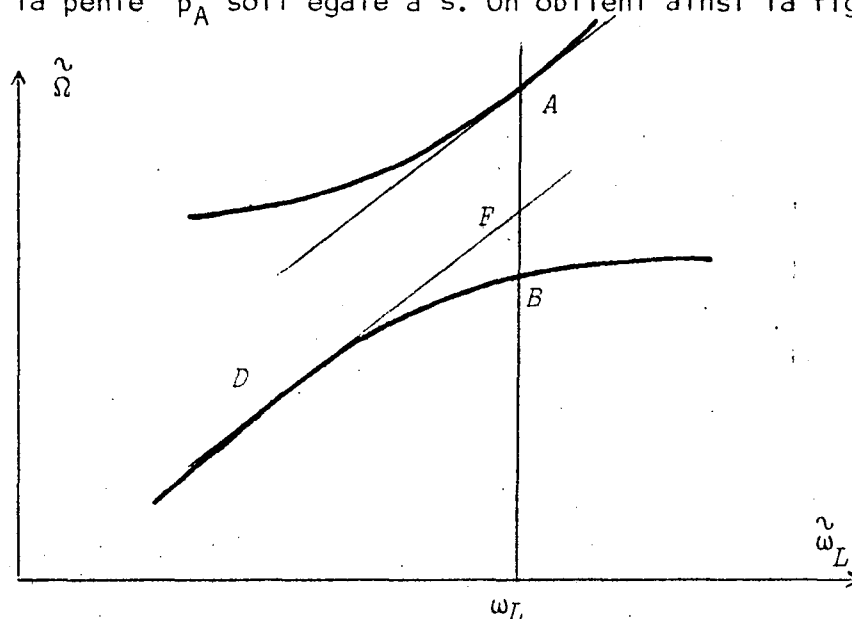


Fig II-3.13 . On suppose ω_L ajusté pour que $p_A = s$

Pour $\omega_1 \ll \Delta$, les deux résonances statistiques sont situées en Ω_A et Ω_F (les points A, C et E de la Figure II-3.12 sont maintenant confondus). Pour $\omega_1 \gg \Delta$, le spectre est composé d'une raie de largeur γ centrée en Ω_A et d'une raie de largeur $|1-2s|\Delta$ centrée en Ω_B (§ II-3.3). Le facteur Doppler est alors nul pour les atomes correspondant au point D et la résonance statistique en Ω_F disparaît. On prévoit donc, dans la région intermédiaire ($\omega_1 \sim \Delta$), la possibilité d'une structure à trois pics centrés en Ω_A , Ω_B et Ω_F : un pic en Ω_A correspondant à la fois à une résonance statistique et au centre de la distribution des vitesses ; une résonance de compensation en Ω_F provenant des atomes en D qui sont dans le flanc de la distribution des vitesses ; une structure large centrée en Ω_B correspondant au centre de cette distribution.

La construction graphique nous permet ainsi de "deviner" l'existence de structures en quadruplet et en triplet assez inattendues pour un système aussi simple que celui étudié ici (deux niveaux seulement sont couplés en laser et ces deux niveaux sont non dégénérés). Nous avons voulu confirmer ces résultats en calculant les spectres correspondants (par la méthode présentée dans la

quatrième partie). Sur les figures 11-3.14 et 11-3.15 sont représentés respectivement un "quadruplet Autler Townes" (diagramme de la Fig 11-3.12) et un "triplet Autler Townes" (diagramme de la Fig 11-3.13) montrant que l'analyse graphique est correcte.

Nous allons maintenant supposer que l'un des deux niveaux couplés au laser est dégénéré et nous allons voir que les spectres de fluorescence présentent alors des structures nouvelles et plus intéressantes, en ce qui concerne le phénomène de compensation que les structures Autler Townes.

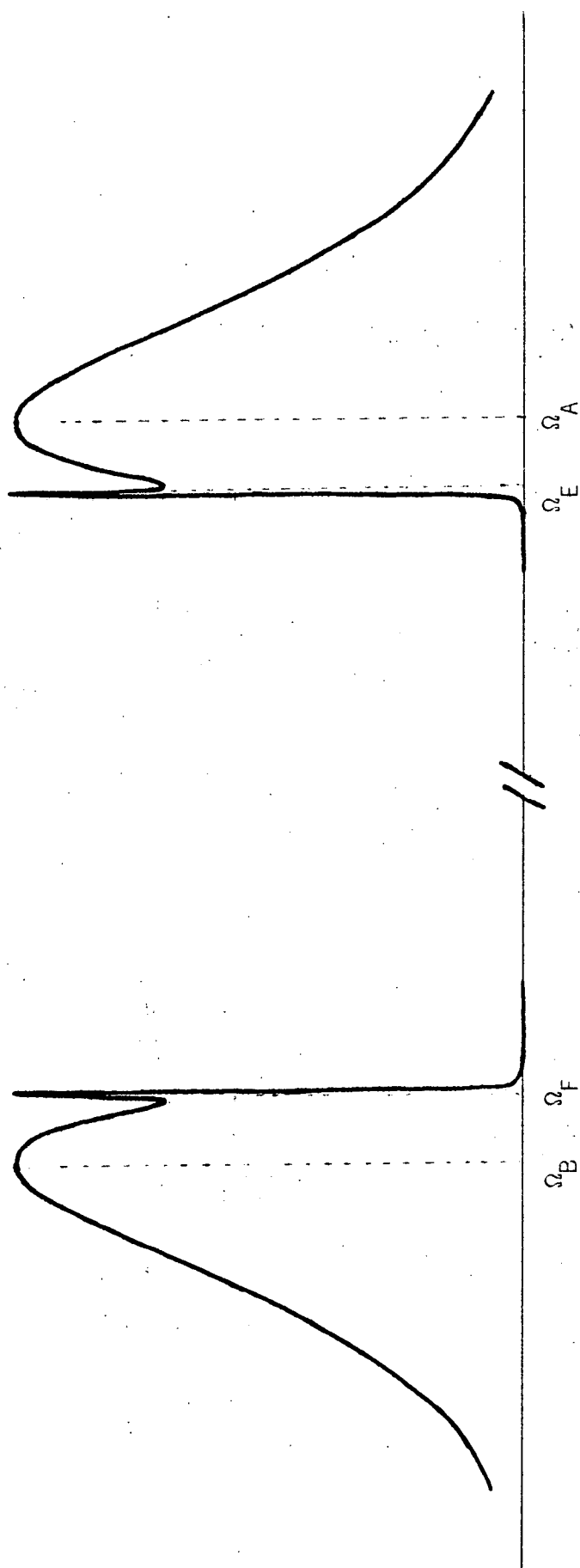


Fig 11-3.14 : Spectre ^{calculé} Toomes ayant une structure en quadruplet . Ce spectre a été calculé
 pour les valeurs suivantes des paramètres :
 $S = 0,75$; $\omega_1/2\pi = 2200$ MHz ; $\Delta/2\pi = 1600$ MHz ; $\gamma/2\pi = 2$ MHz ;
 $\omega_L = \omega_0$. Les fréquences Ω_A , Ω_E , Ω_F , Ω_B sont les ordonnées des points A, E, F et B
 de la Figure II-3.12.

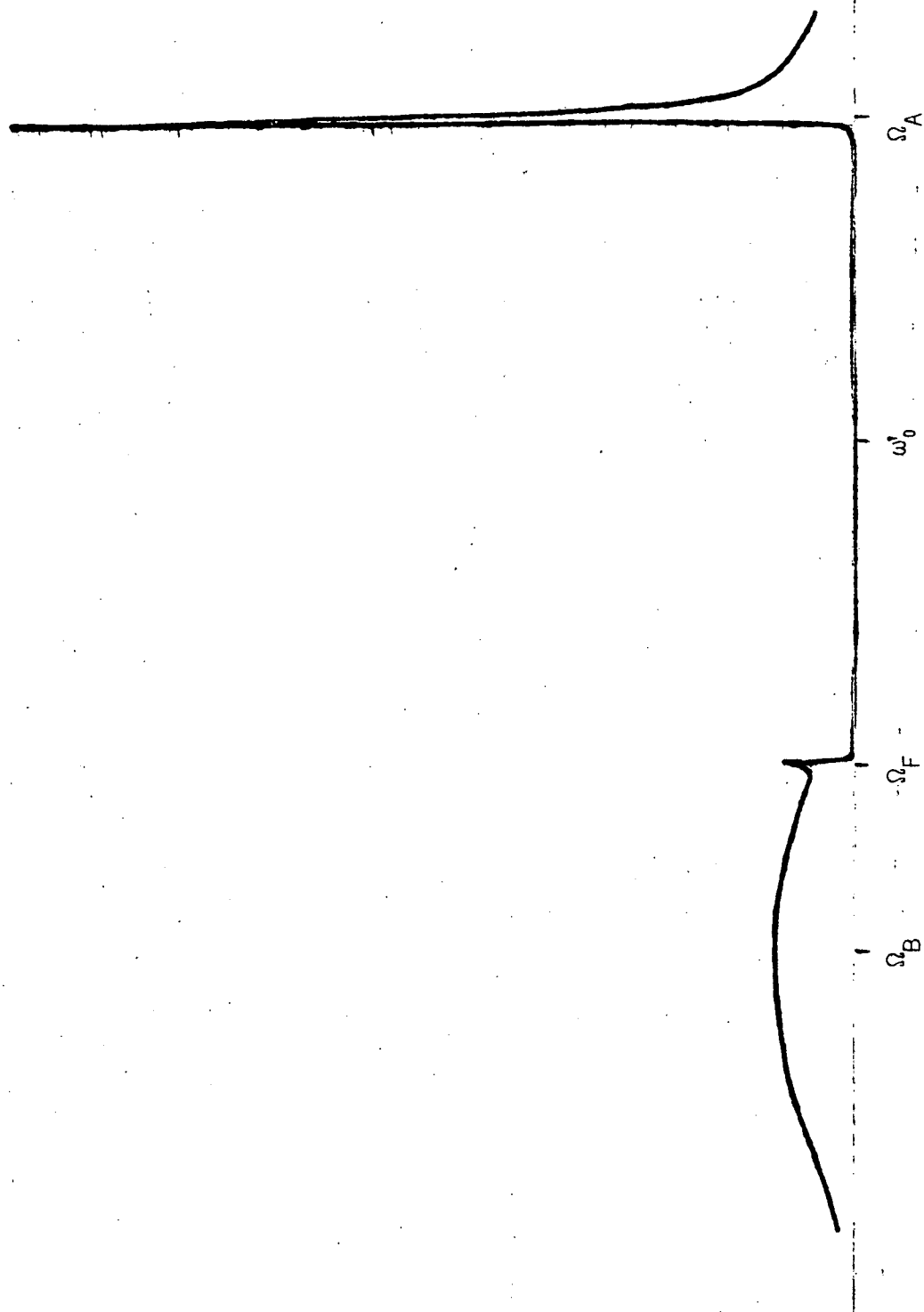


Fig II-3.15 : Spectre Autler Townes ayant une structure en triplet. Ce spectre a été calculé pour les valeurs suivantes des paramètres : $s = 0,75$; $\omega_1/2\pi = 1100\text{ MHz}$; $\Delta/2\pi = 1600\text{ MHz}$; $\gamma/2\pi = 2\text{ MHz}$; $(\omega_L - \omega_0)/2\pi = 635\text{ MHz}$. Les fréquences Ω_A , Ω_F et Ω_B sont les ordonnées des points A, F et B de la Fig II-3.13

CHAPITRE 11-4

COMPENSATION DE L'EFFET DOPPLER PAR DES DEPLACEMENTS LUMINEUX DEPENDANT DE LA VITESSE.

Nous nous intéressons maintenant au système atomique représenté sur la Figure 11-1.6 (page 130) et correspondant à la situation expérimentale que nous avons utilisée pour mettre en évidence la compensation de l'effet Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse (voir la troisième partie).

Nous construisons d'abord le diagramme de fréquence correspondant, ce qui nous permet d'obtenir la condition de compensation (§ 11-4.1). Ensuite, nous discutons plus précisément les caractéristiques importantes du phénomène de compensation pour $\omega_1 \gg \Delta$ (§ 11-4.2) et pour $\omega_1 < \Delta$ (§ 11-4.3).

11-4.1 Le diagramme de fréquence

Pour expliquer simplement la structure du diagramme de fréquence nous le construisons d'abord dans le cas $\omega_1 \ll \delta$; on peut alors en donner une interprétation perturbative : l'atome émet trois fréquences correspondant aux trois processus de la Fig 11-4.1.

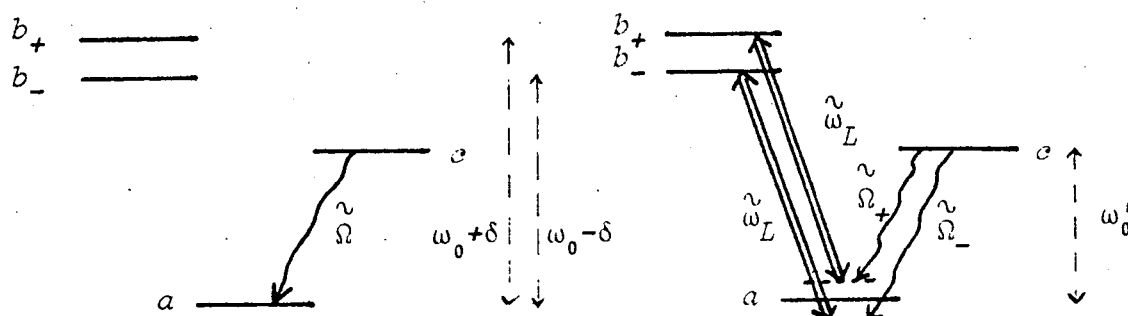


Fig 11-4.1 Interprétation perturbative des trois fréquences d'émission de l'atome.

Le processus II-4.1a correspond à l'émission d'un photon à la fréquence atomique non perturbée ω'_0 . Il donne donc naissance dans le diagramme à une droite horizontale d'ordonnée ω'_0 (Fig II-4.2). Les deux processus II-4.1b correspondent à des processus "Raman inverse" où l'atome partant de c émet spontanément un photon $\tilde{\omega}_\pm$ (ou $\tilde{\omega}_-$) puis absorbe un photon laser $\tilde{\omega}_L$ pour arriver en b_+ (ou b_-) ; les fréquences $\tilde{\omega}_\epsilon$ ($\epsilon = \pm 1$) sont donc données par :

$$\tilde{\omega}_L - \tilde{\omega}_\epsilon = \omega_0 + \epsilon\delta - \omega'_0 \quad (II-4.1)$$

$$\text{c'est-à-dire } \tilde{\omega}_\epsilon = \omega'_0 + (\tilde{\omega}_L - \omega_0 - \epsilon\delta) \quad (II-4.2)$$

avec $\epsilon = +1$ pour b_+ ; $\epsilon = -1$ pour b_- . Les deux processus II-4.1b donnent donc naissance dans le diagramme à deux droites de pente 1 coupant la droite horizontale aux points d'abscisse $\omega_0 + \epsilon\delta$ et d'ordonnée ω'_0 (Fig II-4.2).

En fait , les deux croisements ci-dessus sont "évités" à cause de l'interaction atome-laser ; ils se transforment en anticroisements et on obtient le diagramme de la Fig. II-4.2.

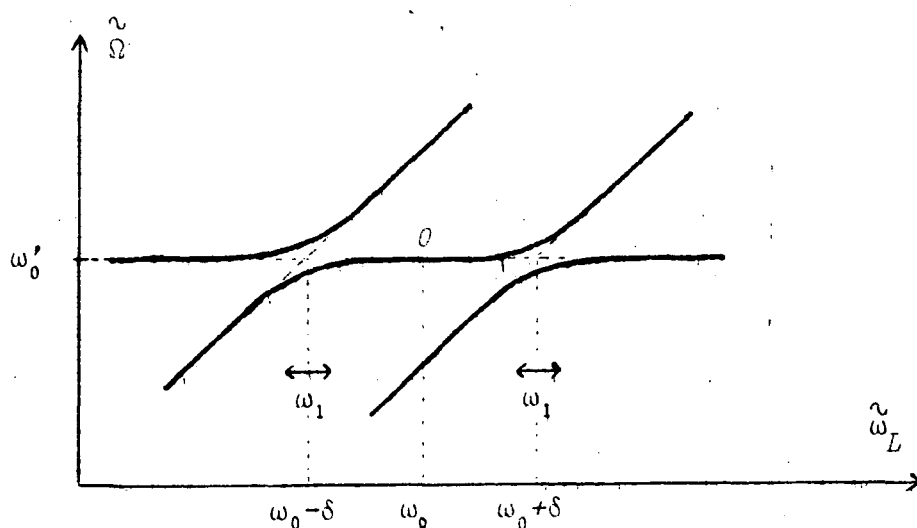


Fig. II-4.2 Le diagramme de fréquence dans le cas $\omega_1 \ll \delta$. Il correspond à deux anticroisements bien séparés (échelle ω_1 de chaque anticroisement petite devant la distance 2δ entre les deux anticroisements),

Rappelons que l'on a supposé que le laser a une polarisation σ linéaire : les couplages du laser avec les deux transitions ab_+ et ab_- sont donc égaux et les

deux anticroisements de la Fig II-4.2 sont identiques. Autrement dit, le diagramme de la Fig II-4.2 est symétrique par rapport au point 0 (abscisse ω_0 , ordonnée ω_0').

La discussion ci-dessus n'est bien sûr valable que pour $\omega_1 \ll \delta$: quand ω_1 devient du même ordre que δ , les deux anticroisements de la Fig. II-4.2 se recouvrent. Il est clair toutefois que le point 0 va rester un point de symétrie du diagramme, ce qui constitue un avantage important pour l'étude du phénomène de compensation. En effet, les fréquences émises autour de 0 dépendent linéairement de la vitesse et, si la pente p_0 au point 0 est égale à s , on obtient une résonance de compensation à la fréquence atomique ω_0' . De plus, le point 0 est, par symétrie, un point d'inflexion et le diagramme reste proche de sa tangente sur une plage plus importante que pour un point ordinaire : le phénomène de compensation touche donc un nombre d'atomes plus important.

Pour aller plus loin, en particulier pour calculer la pente p_0 au point 0, il nous faut maintenant calculer non perturbativement les fréquences d'émission de l'atome, ce que permet la méthode de l'atome habillé (Fig II-4.3).

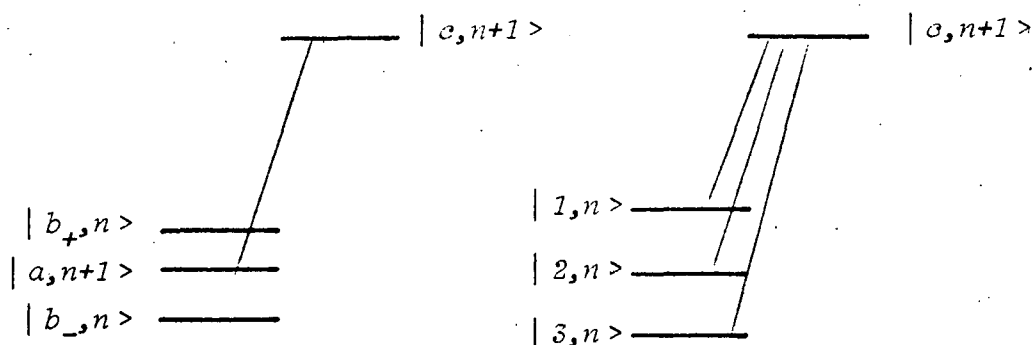


Fig II-4.3 : Diagonalisation de l'hamiltonien de l'atome habillé dans la multiplicité $\{|a, n+1\rangle, |b_{\pm}, n\rangle\}$.

Sur la partie gauche de la Fig II-4.3, nous avons représenté une multiplicité de trois états habillés non perturbés. Les trois états propres $|i, n\rangle$ ($i=1,2,3$) correspondant à la diagonalisation de l'interaction atome laser contiennent chacun une certaine proportion de $|a, n+1\rangle$ et sont donc tous les trois couplés à $|c, n+1\rangle$: il y a donc émission de photons sur les trois transitions

$|c, n+1\rangle \leftrightarrow |i, n\rangle \quad (i = 1, 2, 3)$ aux fréquences

$$\tilde{\Omega} = E_{c, n+1} - E_{i, n} \quad (11-4.3)$$

Prenons comme origine des énergies l'énergie de $|a, n+1\rangle$; $E_{c, n+1}$ est alors égal à

$$E_{c, n+1} - E_{a, n+1} = E_c - E_a = \omega'_0 \quad (11-4.4)$$

Quant aux énergies $E_{i, n}$ des états propres $|i, n\rangle$, elles sont les valeurs propres de l'hamiltonien H de l'atome habillé. On en déduit que les fréquences d'émission $\tilde{\Omega}$ sont les solutions de l'équation

$$\text{Déterminant } (\omega'_0 - \tilde{\Omega} - H) = 0 \quad (11-4.5)$$

où H est la matrice représentant l'hamiltonien dans la base $|a, n+1\rangle$, $|b_+, n\rangle$, $|b_-, n\rangle$, les énergies étant repérées par rapport à celle de $|a, n+1\rangle$

$$H = \begin{bmatrix} 0 & \omega_1/2 & \omega_1/2 \\ \omega_1/2 & \delta - (\tilde{\omega}_L - \omega_0) & 0 \\ \omega_1/2 & 0 & -\delta - (\tilde{\omega}_L - \omega_0) \end{bmatrix} \quad (11-4.6)$$

(on a posé $\omega_1/2 = \langle b_{\pm}, n | V_{AL} | a, n+1 \rangle$)

L'équation (11-4.5) relie les fréquences d'émission $\tilde{\Omega}$ de l'atome dans son référentiel propre à la fréquence apparente $\tilde{\omega}_L$ du laser dans ce référentiel (H dépend de $\tilde{\omega}_L$; voir 11-4.6) ; (11-4.5) est donc l'équation du diagramme de fréquence calculée non perturbativement. Cette équation peut être écrite explicitement en calculant le déterminant dans (11-4.5) :

$$y (y - x)^2 - y \delta^2 - \omega_1^2 (y-x)/2 = 0 \quad (11-4.7)$$

Pour simplifier l'écriture, on a posé $x = \tilde{\omega}_L - \omega_0$ et $y = \tilde{\Omega} - \omega'_0$; autrement dit, on a ramené l'origine des abscisses et des ordonnées au point 0. On retrouve sur cette équation que le diagramme passe par 0 ($x = y = 0$ est solution de 11-4.7) ; on retrouve également que 0 est centre de symétrie du diagramme (si le couple x, y est solution de 11-4.7, il en est de même pour $-x, -y$). Le diagramme de fréquence correspondant à 11-4.7 est représenté sur la Figure 11-4.4.

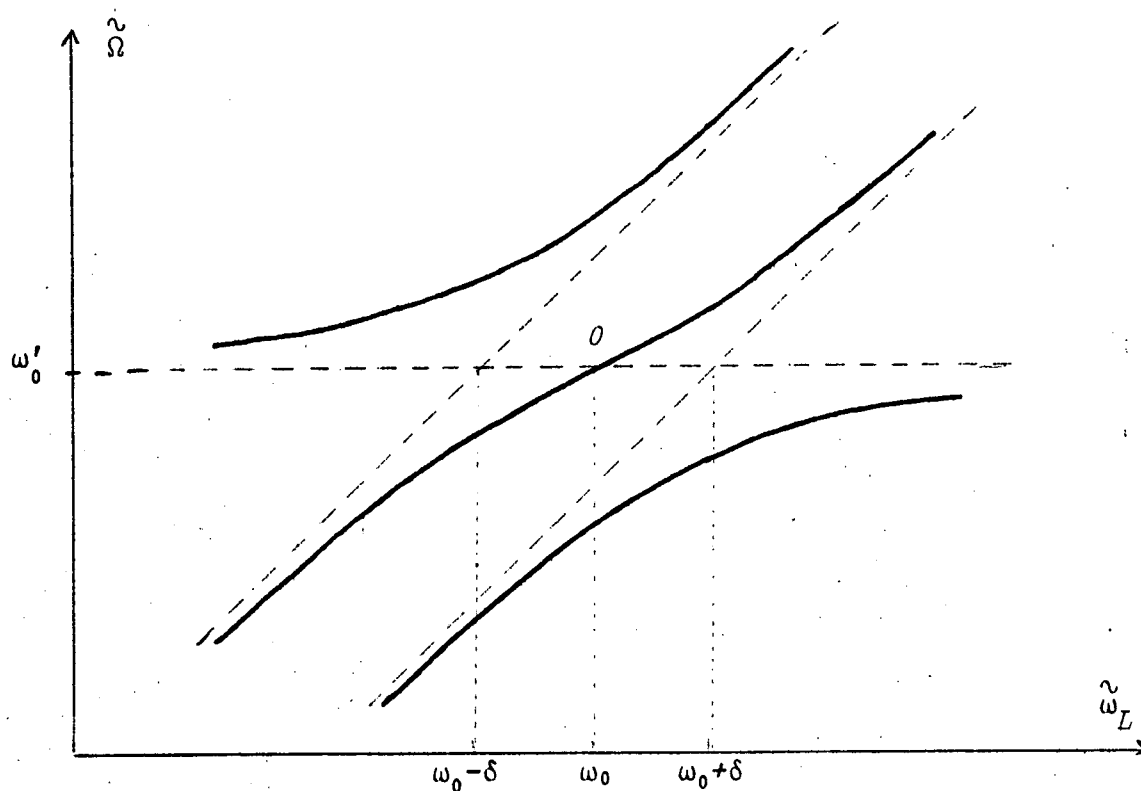


Fig. II-4.4 : Le diagramme de fréquence pour $\omega_1 \sim \delta$

Le plus intéressant pour nous dans l'équation (II-4.7) est qu'elle permet de calculer la pente du diagramme au point 0. Pour obtenir cette pente, nous réécrivons (II-4.7) sous la forme suivante, très bien adaptée à l'étude du voisinage du point 0 :

$$y(\delta^2 + \omega_1^2/2) = x\omega_1^2/2 + y(y-x)^2 \quad (\text{II-4.8})$$

On en déduit la pente p_0 au point 0 (en négligeant le terme $y(y-x)^2$ du troisième ordre)

$$p_0 = y/x = \omega_1^2/(\omega_1^2 + 2\delta^2) \quad (\text{II-4.9})$$

Lorsque ω_1/δ varie de 0 à ∞ , p_0 varie de 0 à 1. La condition de compensation ($p_0 = s$) ne peut donc être satisfaite que si $0 < s < 1$ c'est-à-dire pour une observation vers l'avant et pour $\omega_0' < \omega_0$ (mêmes conditions que pour l'observation du doublet Autler Townes dans une vapeur : voir le § II-3.2). Dans le cas $0 < s < 1$ la compensation correspond à une certaine valeur du rapport ω_1/δ , que l'on peut déduire de (II-4.9)

$$\omega_1/\delta = \sqrt{2s/(1-s)} \quad (\text{II-4.10})$$

Remarques :

(i) Les termes non linéaires dans II-4.8 décrivent la façon dont le diagramme s'éloigne de sa tangente. Ils jouent donc un rôle important en ce qui concerne le nombre d'atomes pour lesquels la compensation est réalisée. Pour la suite de la discussion, il est intéressant de les calculer à leur ordre le plus bas,

c'est-à-dire au troisième ordre. On suppose $p_0 = s$; (II-4.8) s'écrit donc au premier ordre $y = sx$; le terme non linéaire s'écrit donc à l'ordre le plus bas $y(y-x)^2 = s(1-s)^2 x^3$. Enfin (II-4.9) permet d'écrire $\delta^2 + \omega_1^2/2 = \omega_1^2/2s$ et l'on obtient à l'ordre 3 en x inclus :

$$y = sx + 2s^2(1-s)^2 x^3 / \omega_1^2 \quad (\text{II-4.11})$$

(ii) Par sa définition, le diagramme donne les fréquences d'émission Ω correspondant aux transitions $|c, n-1\rangle \rightarrow |i, n\rangle$ ($i=1,2,3$; voir Fig II-4.3). Comme dans le cas de l'effet Autler Townes optique (voir la remarque du § II-3.1), le diagramme contient en fait des informations supplémentaires, en particulier sur les poids des raies d'émission. On démontre en effet dans l'appendice A2 que la relation (II-3.7) reste valable ici :

$$|\langle i, n | a, n+1 \rangle|^2 = 1-p \quad (\text{II-4.12})$$

où p est la pente du diagramme au point correspondant à la transition $|c, n+1\rangle \rightarrow |i, n\rangle$. Or le poids I de la raie est déterminé justement par $|\langle i, n | a, n+1 \rangle|^2$ (voir II-3.6) et on obtient par suite

$$I \sim (1-p) \quad (\text{II-4.13})$$

La relation de fermeture s'écrit ici

$$|\langle 1, n | a, n+1 \rangle|^2 + |\langle 2, n | a, n+1 \rangle|^2 + |\langle 3, n | a, n+1 \rangle|^2 = 1 \quad (\text{II-4.14})$$

soit d'après (II-4.12)

$$(1-p_1) + (1-p_2) + (1-p_3) = 1$$

$$p_1 + p_2 + p_3 = 2 \quad (\text{II-4.15})$$

Comme pour l'effet Autler Townes (voir II-3.10) , on a obtenu une règle de somme pour les pentes p_1 , p_2 et p_3 du diagramme aux trois points ayant la même abscisse.

II-4.2 Compensation totale de l'effet Doppler ($\omega_1 \gg \Delta$)

Lorsque $\omega_1 \gg \Delta$, les seuls points du diagramme qui interviennent sont situés dans un intervalle de largeur Δ autour de ω_L , intervalle dans lequel on peut assimiler le diagramme à trois segments de droite portés par les tangentes (Fig II-4.5)

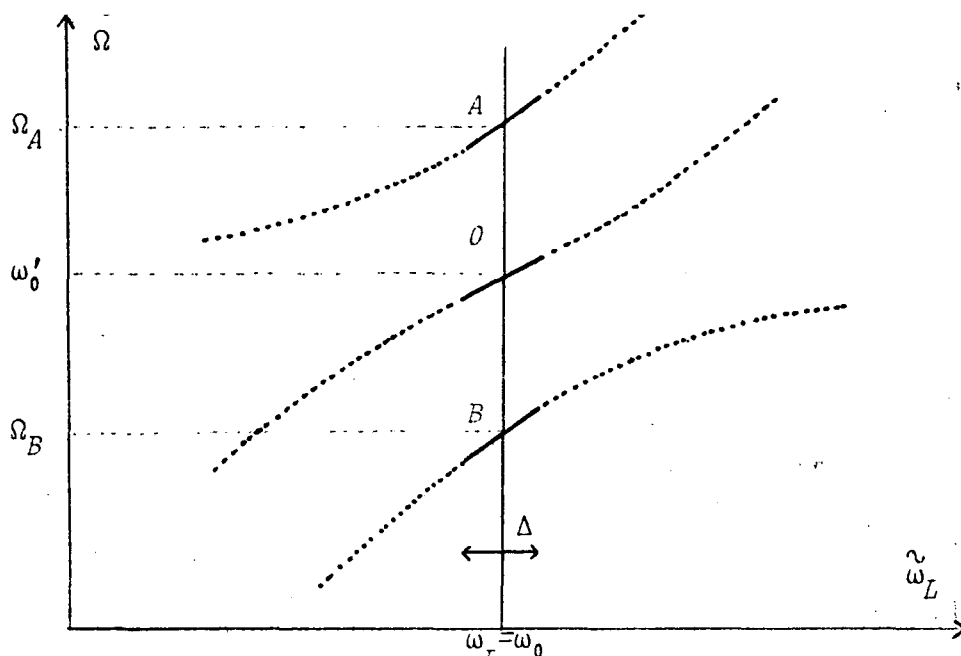


Fig II-4.5

Supposons de plus que l'on ait ajusté le rapport ω_1/δ de façon à ce que la pente p_0 au point O soit égale à s (relation II-4.9 et II-4.10). On obtient alors une compensation totale de l'effet Doppler : tous les atomes de la cellule émettent à la même fréquence ω'_0 dans le laboratoire et il y a dans le spectre de fluorescence de la vapeur une raie de largeur γ centrée en ω'_0 .

Remarque :

Comme dans le cas de l'effet Autler Townes, la condition pour que la compensation soit totale est en fait plus sévère que $\omega_1 \gg \Delta$. En effet même si $\omega_1 \gg \Delta$, le diagramme s'écarte légèrement de sa tangente en O sur un intervalle Δ (Fig II-4.5 bis)

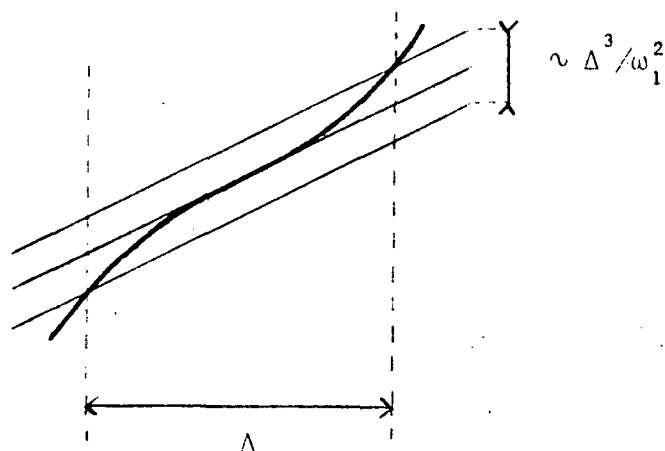


Fig. II-4.5bis

Cet écart est déterminé, non par des termes d'ordre 2 comme pour l'effet Autler Townes, mais par des termes d'ordre 3 puisque O est un point d'inflexion :

Cet écart est donc de l'ordre de Δ^3/ω_1^2 (voir II-4.11). Pour que tous les atomes de la cellule émettent dans la largeur γ autour de ω'_0 , il faut donc que

$$\Delta^3/\omega_1^2 \ll \gamma \quad (\text{II-4.16})$$

soit

$$\omega_1 \gg \Delta (\Delta/\gamma)^{1/2} \quad (\text{II-4.17})$$

Cette condition est plus sévère que $\omega_1 \gg \Delta$ mais moins sévère que la condition $\omega_1 \gg \Delta (\Delta/\gamma)$ que nous avons établie pour l'effet Autler Townes (voir II-3.20), ce qui montre quantitativement l'intérêt d'un point d'inflexion.

Le spectre contient, en plus de l'arésonance de compensation en ω'_0 , deux raies gaussiennes centrées en Ω_A et Ω_B (Fig II-4.5) de largeur

$$|p_A - s| \Delta = |p_B - s| \Delta = |1 - 3s/2| \Delta \quad (\text{II-4.18})$$

(en effet $p_A = p_B$ par symétrie du diagramme ; on a de plus utilisé la règle de somme $p_A + p_B + p_0 = 2$ (voir II-4.15) pour obtenir $p_A = p_B = 1 - s/2$; dans le cas particulier $s = 2/3$, p_A et p_B seraient aussi égales à s et le spectre serait composé de trois raies fines). Les poids des trois raies peuvent être calculées d'après (II-4.13)

$$I_0 \sim (1-p) \sim (1-s) \quad (\text{II-4.19})$$

$$I_A = I_B \sim (1-p_A) \sim \frac{s}{2} \quad (\text{II-4.20})$$

Le spectre est représenté sur la Figure II-4.6

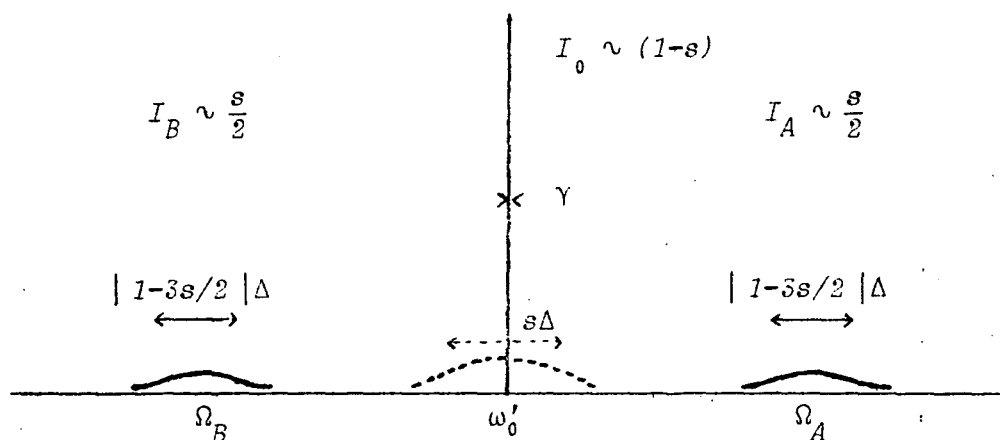


Fig II-4.6 : Spectre théorique lorsque la compensation totale est réalisée (ω_1/δ ajusté pour que $p_0 = s$ et ω_1 suffisamment grand pour que tous les atomes émettent à ω'_0 (condition II-4.17)).

Nous avons aussi représenté, en pointillés sur la fig. II-4.6, le spectre en l'absence d'irradiation laser : c'est une gaussienne de poids total 1 et de largeur $s\Delta$ (Δ est la largeur Doppler sur la transition saturée de fréquence ω_0 ; la largeur Doppler sur la transition de détection de fréquence ω'_0 est donc $\Delta' = s\Delta$ puisque $s = \omega'_0/\omega_0$). Une caractéristique importante de l'effet de compensation apparaît ainsi clairement sur la fig. II-4.6 : l'augmentation du signal à la fréquence ω'_0 que l'on peut exprimer quantitativement par le rapport

$$A = \frac{\text{hauteur en } \omega'_0 \text{ en présence de l'irradiation}}{\text{hauteur en } \omega'_0 \text{ en l'absence d'irradiation}} \quad (\text{II-4.21})$$

Ce rapport peut aisément être calculé comme le rapport de la hauteur d'une lorentzienne de largeur γ et de poids $(1 - s)$ à la hauteur d'une gaussienne de largeur $s\Delta$ (largeur totale à $1/e$) et de poids 1 ; on trouve

$$A = \frac{s(1 - s)}{\sqrt{\pi}} \frac{\Delta}{\gamma} \quad (\text{II-4.22})$$

Le rapport Δ/γ étant en général très grand ($\Delta \sim 1\text{GHz}$; $\gamma =$ quelques dizaines de MHz), l'effet d'augmentation du signal à la fréquence ω'_0 est donc très spectaculaire. On peut remarquer que A dépend de s et que la valeur optimale de s est $s = 1/2$ (maximum de $s(1 - s)$).

Nous avons déjà souligné la grande anisotropie de l'effet de compensation. Nous pouvons ici mettre cette anisotropie en évidence en comparant le spectre vers l'avant (fig. II-4.6) au spectre vers l'arrière (fig. II-4.7)

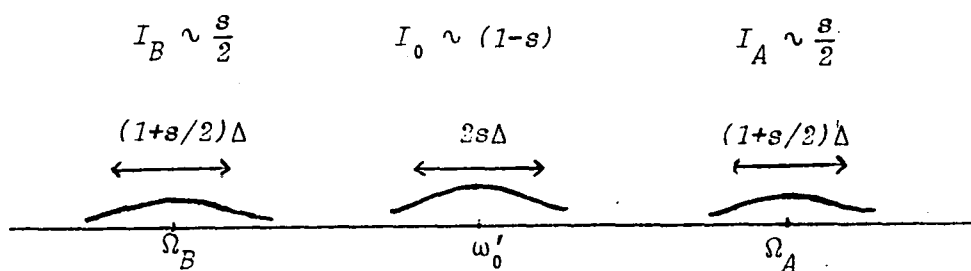


Fig. II-4.7 : Spectre vers l'arrière lorsque la compensation totale est réalisée pour le spectre vers l'avant.

Les largeurs des raies sont calculées de la façon suivante : la fréquence d'émission $\tilde{\Omega}$ dans le référentiel propre de l'atome est

$$\tilde{\Omega} = \Omega_M + p u \quad (II-4.23)$$

où u est la vitesse de l'atome, Ω_M l'ordonnée du point M (M est l'un des trois points O, A ou B de la figure II-4.5) et p la pente du diagramme au point M. La fréquence d'émission vers l'arrière dans le laboratoire est donc

$$\Omega = \Omega_M + p u + s u \quad (II-4.24)$$

et la raie centrée en Ω_M est donc une gaussienne de largeur $(p + s)\Delta$ (et non $|p - s|\Delta$ comme dans la direction avant). En particulier, la raie centrale de largeur γ vers l'avant ($p_0 - s = 0$) a une largeur $2s\Delta$ vers l'arrière : les déplacements lumineux compensent l'effet Doppler dans la direction avant, mais le doublent vers l'arrière.

On remarque que le signal en ω'_0 est maintenant plus petit qu'en l'absence d'irradiation : le rapport A_{arr} défini comme en II-4.21 est le rapport de la hauteur d'une gaussienne de poids $(1 - s)$ et de largeur $2s\Delta$ à la hauteur d'une gaussienne de poids 1 et de largeur $s\Delta$

$$A_{arr} = (1 - s)/2 < 1 \quad (II-4.25)$$

Ainsi, non seulement l'effet de compensation augmente le signal à la fréquence ω'_0 vers l'avant, mais de plus, il le diminue vers l'arrière : l'anisotrope avant-arrière est donc très importante.

Remarque :

On peut se demander quelle est l'allure du signal pour une observation sous un angle θ quelconque



On montre dans l'appendice A2 que chacun des trois segments de la fig. II-4.5 donne une gaussienne centrée en Ω_M et de largeur $(p^2 - 2ps \cos \theta + s^2)^{1/2} \Delta$. Pour une observation vers l'avant ($\cos \theta = 1$) ou vers l'arrière ($\cos \theta = -1$), on retrouve les largeurs connues $|p - s|\Delta$ et $(p + s)\Delta$. Dans le cas où la compensation est réalisée vers l'avant ($p = s$), la largeur de la raie sous un angle θ est $2s\Delta \sin(\theta/2)$. Ce fait a une conséquence expérimentale importante : pour observer effectivement une raie de largeur γ dans le spectre, il faut que l'angle θ entre la direction d'observation et la direction d'excitation soit très petit

$$\theta \Delta \ll \gamma \quad \rightarrow \quad \theta \ll \gamma/\Delta \quad (II-4.26)$$

ce qui limite considérablement l'angle solide de détection.

II-4.3 Compensation partielle de l'effet Doppler ($\omega_1 < \Delta$)

Nous avons décrit dans le paragraphe précédent une situation idéale où tous les atomes de la vapeur émettent à la fréquence ω_0' . Deux conditions sont nécessaires pour réaliser cette compensation totale de l'effet Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse :

(i) il faut d'abord que le terme linéaire en v dans $\tilde{\Omega}$ compense le déplacement Doppler (autrement dit, que la pente p_0 du diagramme au point 0 soit égale à s) ;

(ii) il faut ensuite que les termes non linéaires en v aient un effet négligeable pour les vitesses v effectivement présentes dans la vapeur (autrement dit, que le diagramme ne s'écarte pas de sa tangente d'une quantité supérieure à γ sur toute la largeur d'un intervalle Δ : voir la fig. II-4.5bis).

La première condition peut être réalisée très simplement en ajustant le rapport ω_1/δ à la valeur donnée par la relation (II-4.10) (on peut, par exemple, varier le champ magnétique). Réaliser la seconde condition est par contre très difficile parce qu'il faut disposer d'une puissance laser suffisante pour que la fréquence Rabi ω_1 soit plus grande que la largeur Doppler (condition II-4.17 : $\omega_1 \gg \Delta (\Delta/\gamma)^{1/2}$). Il faut donc se demander maintenant quelle est l'allure du spectre lorsque la compensation n'est réalisée que pour une fraction des atomes de la cellule ("compensation partielle").

La figure II-4.8 permet alors de comprendre l'allure du spectre

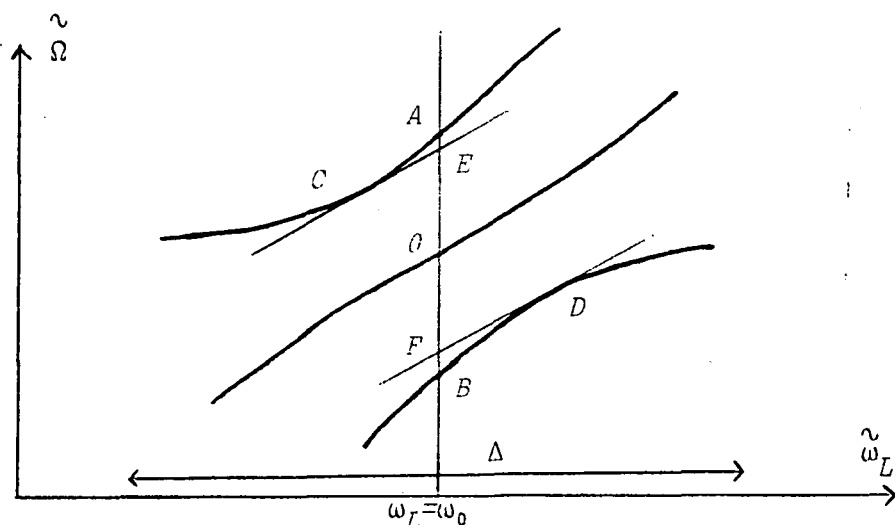


Fig. II-4.8 : Diagramme de fréquence et construction graphique ; on suppose $p_0 = s$ et $\omega_1 \ll \Delta$

Pour chacune des deux branches "latérales" du diagramme, la pente varie de façon continue de 0 à 1. Il existe donc sur chacune d'elles un point où la pente est égale à s (les points C et D sur la fig. II-4.8). Ces points sont maintenant à l'intérieur de l'intervalle Δ (ce qui n'était pas le cas pour $\omega_1 \gg \Delta$) et ils donnent donc naissance à deux résonances statistiques centrées en Ω_E et Ω_F (les ordonnées des points E et F de la fig. II-4.8). La fig. II-4.8 permet de prévoir une forme symétrique pour la résonance statistique correspondant au point 0 et une forme dissymétrique pour les deux autres résonances centrées en Ω_E et Ω_F . Nous avons représenté sur la fig. II-4.9 un spectre calculé qui confirme les caractéristiques prévues ci-dessus par la méthode graphique.

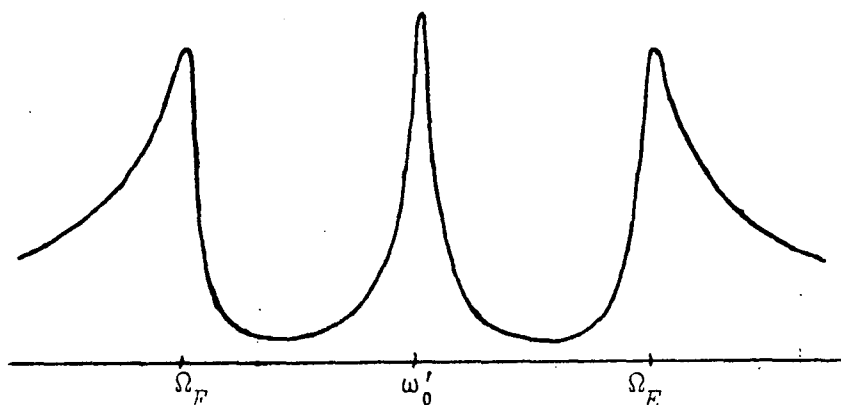


Fig. II-4.9 : Spectre théorique calculé pour $\omega_1 \gg \Delta$
 ($\omega_L = \omega_0$, $\omega_1 = 10 \gamma$, $s = 1/2$, δ choisi pour que $p_0 = s$) ; on observe trois résonances statistiques en ω'_0 , Ω_E et Ω_F .

La construction graphique permet enfin de prévoir comment varie la hauteur du signal en ω'_0 en fonction de ω_1 (en supposant bien sûr que lorsque ω_1 varie, δ varie aussi de façon à ce que la pente p_0 reste constamment égale à s). En effet, revenons à la figure II-4.5bis : elle permet de calculer l'intervalle Δu sur l'axe des vitesses correspondant à des atomes qui émettent dans une largeur γ autour de ω'_0 ; cet intervalle est donné par l'équation

$$\gamma \sim (\Delta u)^3 / \omega_1^2 \quad (II-4.27)$$

A partir de (II-4.11), on peut écrire plus précisément

$$\gamma/2 = 2 s^2 (1 - s)^2 \left(\frac{\Delta u}{2} \right)^3 / \omega_1^2 \quad (II-4.28)$$

$$\text{soit} \quad \Delta u = \left[2 \gamma \omega_1^2 / (s(1-s))^2 \right]^{1/3} \quad (11-4.29)$$

Appelons A la hauteur du signal en ω_0' (rapportée à la hauteur du signal en ω_0' en l'absence d'irradiation ; voir 11-4.21) ; A est égal au rapport entre Δu et l'intervalle de l'axe des vitesses qui correspondrait à l'émission dans une largeur γ autour de ω_0' en l'absence d'irradiation, intervalle qui est de l'ordre de γ

$$A \sim \Delta u / \gamma \quad (11-4.30)$$

$$\text{soit} \quad A \sim (\omega_1 / \gamma)^{2/3} \quad (11-4.31)$$

On retrouve encore une fois quantitativement l'intérêt du point d'inflexion en 0 ; en effet, le même raisonnement pour l'effet Autler Townes nous avait conduit au résultat $A \sim (\omega_1 / \gamma)^{1/2}$ (voir 11-3.14).

Le raisonnement ci-dessus n'est bien sûr valable que tant que Δu est plus petit que Δ ; si Δu devient plus grand que Δ , tous les atomes de la cellule émettent à la fréquence ω_0' et il devient inutile d'augmenter Δu . A est alors égal à la valeur limite A_∞ correspondant à la compensation totale et dont nous avons calculé la valeur précise dans le § 11-4.2 (expression 11-4.22)

$$A_\infty = \frac{s(1-s)}{\sqrt{\pi}} \frac{\Delta}{\gamma} \quad (11-4.32)$$

Cette discussion suggère de regrouper les deux cas ci-dessus dans une formule générale

$$A = A_\infty R (\Delta u / \Delta) \quad (11-4.33)$$

où R est un "taux effectif de compensation" mesurant la proportion des atomes de la vapeur qui contribuent à l'émission en ω_0' : pour $\Delta u \gg \Delta$, R est égal à 1 et on retrouve (11-4.32) ; pour $\Delta u \ll \Delta$, R est proportionnel à $\Delta u / \Delta$ et on retrouve (11-4.30) ; dans tous les cas, R est fonction seulement de

$$\frac{\Delta u}{\Delta} = \left[\frac{2 \gamma \omega_1^2}{s^2 (1-s)^2 \Delta^3} \right]^{1/3} \quad (11-4.34)$$

Dans l'appendice A4, nous calculons A par la méthode algébrique exposée dans la quatrième partie. Ce calcul confirme entièrement l'expression (11-4.33) suggérée par la construction graphique ; il permet de plus d'obtenir la dépendance de R en fonction de $\Delta u / \Delta$. La fonction $R(\Delta u / \Delta)$

ainsi obtenue, qui ne dépend plus d'aucun paramètre, est représentée sur la figure 11-4.10.

Conclusion

Nous avons montré dans ce chapitre comment l'utilisation d'une dégénérescence Zeeman dans le niveau supérieur de la transition saturée (fig. 11-1.6) permettait d'améliorer les caractéristiques de l'effet de compensation : on peut obtenir une résonance de compensation à la fréquence atomique ω_0' ; la condition de compensation peut être réalisée par une variation du champ magnétique ; le fait que le point 0 soit un point d'inflexion permet de réaliser la compensation pour un nombre d'atomes plus grand (limité par des termes d'ordre 3 et non d'ordre 2) ; enfin, pour la même raison (0 point d'inflexion) la résonance de compensation a une forme symétrique.

L'effet serait particulièrement spectaculaire si l'on disposait d'une puissance suffisante pour réaliser une compensation totale : la fluorescence totale qui est distribuée dans un intervalle de largeur $s\Delta$ en l'absence d'irradiation laser serait, dans une proportion importante (égale à $(1-s)$), redistribuée dans une largeur γ autour de ω_0' (voir la fig. 11-4.6). On obtiendrait ainsi notamment une forte augmentation du signal en ω_0' (de l'ordre de Δ/γ ; voir plus précisément l'expression 11-4.22).

Mais nous avons aussi montré que la résonance de compensation à la fréquence ω_0' apparaît très nettement même lorsque la compensation n'est que partielle ($\omega_1 = 10 \gamma \ll \Delta$ sur la fig. 11-4.9).

Nous avons conclu de cette étude que le phénomène de compensation pouvait être mis en évidence expérimentalement avec une puissance laser raisonnable (quelques centaines de mW). C'est ce qui nous a conduit à entreprendre l'étude expérimentale de ce phénomène, étude expérimentale décrite dans la troisième partie de cette thèse.

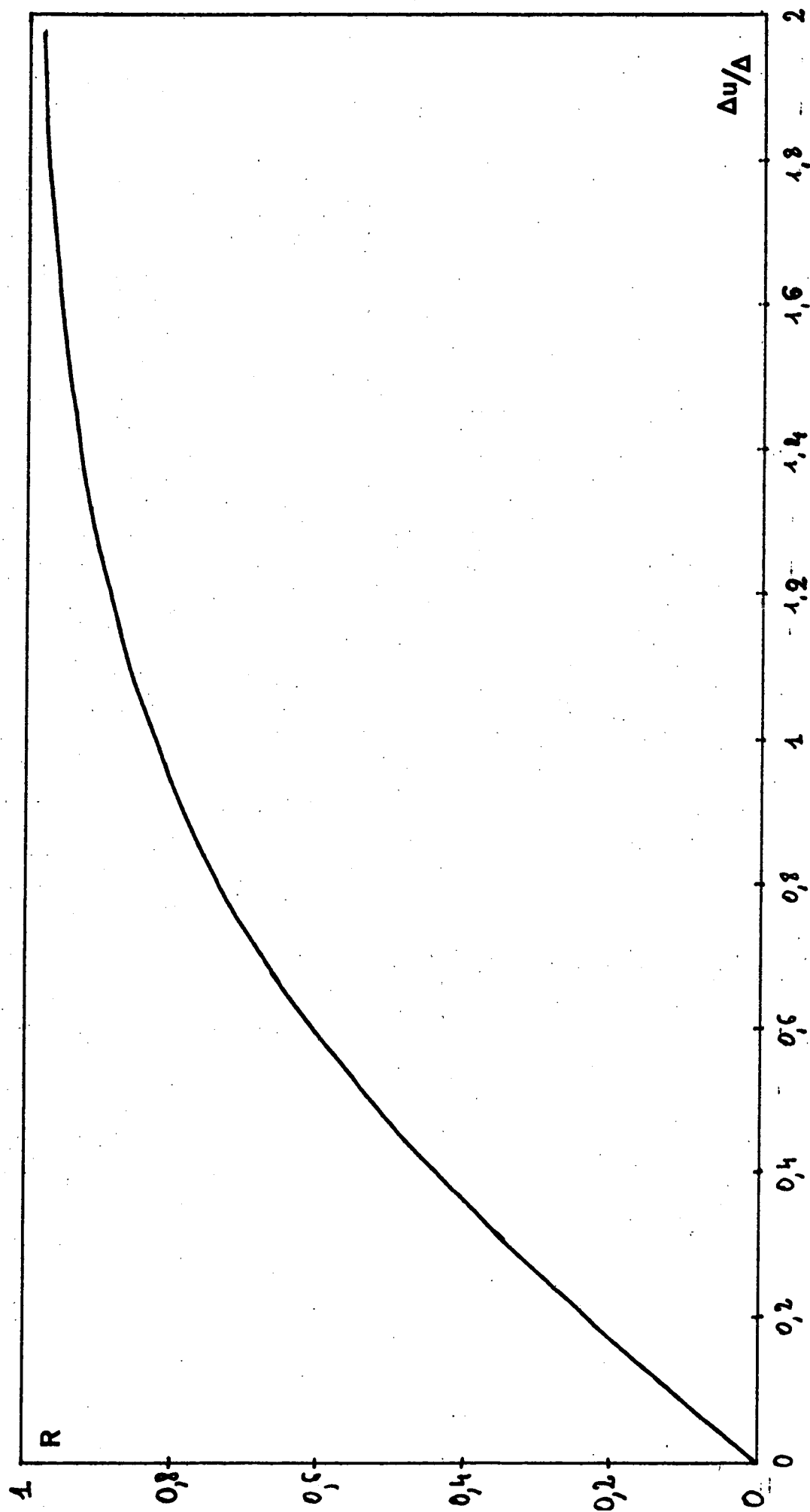


Fig II-4.10 : Variation du "taux effectif de compensation" R (défini par l'équation II-4.33) en fonction de $\Delta u / \Delta$ (l'expression de $\Delta u / \Delta$ en fonction des paramètres S, γ, ω_1 et Δ est donnée par II-4.34).

C H A P I T R E 11-5

AUTRES APPLICATIONS DE LA METHODE GRAPHIQUE

Dans cette deuxième partie, nous avons d'abord développé une méthode graphique qui permet, quand on connaît le diagramme de fréquence relatif à un schéma de niveaux particulier, d'en déduire l'allure des spectres de fluorescence.

Cette méthode graphique nous a permis de retrouver simplement les conditions bien connues d'observation d'un doublet Autler Townes dans le spectre d'une vapeur à la limite Doppler ($\omega_1 \ll \Delta$). Elle nous a ensuite permis de prévoir l'existence de structures tout à fait nouvelles dans les spectres Autler Townes : doublet dont les deux composantes de poids comparables ont, pour l'une, la largeur Doppler, pour l'autre, la largeur homogène (pour $\omega_1 \gg \Delta$); où même, dans la région intermédiaire ($\omega_1 \sim \Delta$), structure à trois ou quatre maxima.

Nous avons ensuite appliqué la méthode graphique au système à trois niveaux correspondant aux expériences de compensation de l'effet Doppler. Ceci nous a permis d'obtenir un certain nombre de résultats relatifs à ces expériences (décrites dans la troisième partie) : condition de compensation ; positions, poids et largeurs des raies à la limite d'une compensation totale ; allure du spectre pour une compensation partielle ; variation avec ω_1 de la hauteur du signal en ω_0 .

La méthode graphique a également été appliquée à plusieurs autres situations expérimentales que nous n'avons pas étudiées dans cette deuxième partie : nous verrons par exemple dans la troisième partie l'étude de la compensation de l'effet Doppler sur des systèmes atomiques différents de celui étudié ici, présentant en particulier d'intéressants effets de polarisation. Nous nous sommes limités dans ce chapitre à l'étude de situations expérimentales sans effets de population (le niveau émetteur c n'était pas perturbé par l'excitation laser). Mais la méthode graphique est aussi parfai-

tement adaptée à l'étude des spectres présentant des effets de population : pour obtenir ces spectres, il suffit de calculer les populations des divers états de l'atome habillé en résolvant l'équation pilote décrivant la relaxation de l'atome habillé (voir la première partie).

Rappelons enfin deux applications intéressantes de la méthode graphique, discutées en détail dans les thèses de troisième cycle de François HOFFBECK et Marc HIMBERT :

(i) Nous avons vu dans la première partie que le spectre de fluorescence émis sur la transition saturée elle-même était un triplet de fluorescence dans les expériences sur jet atomique ; l'étude du diagramme de fréquence correspondant permet de prévoir que le spectre de fluorescence émis par une vapeur sur la transition saturée est encore un triplet à condition que l'observation se fasse dans la direction avant.

(ii) L'absorption saturée et ses développements récents [Bb] jouent un rôle très important dans le développement de la spectroscopie laser. Il est bien connu que l'interprétation perturbative que l'on donne habituellement des spectres d'absorption saturée (modèle des "trous de population" ; voir § 11-1) n'est plus valable lorsque l'intensité de l'onde pompe devient suffisante pour saturer la transition ($\omega_1 \gg \Gamma$) [Bb1]. La méthode développée ici permet par contre de comprendre très simplement les caractéristiques de ces spectres ; élargissement radiatif, valeur limite pour la profondeur du trou d'absorption saturée, ... Elle a permis aussi de prévoir l'existence de nouvelles résonances dans les spectres d'absorption saturée des systèmes à trois niveaux. L'étude de ces nouvelles résonances et leur mise en évidence expérimentale sont présentées dans la publication reproduite en annexe à cette thèse (Annexe 2) et, de façon plus détaillée, dans la thèse de troisième cycle de Marc HIMBERT.

TROISIEME PARTIE

COMPENSATION DE L'EFFET DOPPLER PAR DES DEPLACEMENTS LUMINEUX DEPENDANT DE LA VITESSE : ETUDE EXPERIMENTALE

Au cours de ce travail de thèse, nous avons étudié expérimentalement trois effets originaux suggérés par la méthode de l'atome habillé développée dans les deux premières parties :

(i) Compensation de l'effet Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse.

(ii) Nouvelles résonances apparaissant dans la spectroscopie d'absorption saturée des systèmes à trois niveaux.

(iii) Corrélations temporelles entre photons émis dans les deux bandes latérales du triplet de fluorescence.

Cette troisième partie est consacrée à une analyse des expériences qui nous ont permis de mettre en évidence le phénomène de compensation de l'effet Doppler (i). Par contre, nous ne présentons pas ici une description détaillée des expériences portant sur les deux autres effets (ii et iii). Nous nous contentons de reproduire les publications correspondantes (annexes 2 et 3 à la fin de cette troisième partie) et de renvoyer, pour une analyse plus approfondie de ces deux expériences aux thèses de troisième cycle de Marc HIMBERT (ii) et de Jean DALIBARD (iii).

CHAPITRE III-1

INTRODUCTION

L'étude théorique de l'effet de compensation de l'effet Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse nous a conduits à l'idée que la mise en évidence expérimentale de cet effet était réalisable avec les puissances laser accessibles actuellement. La figure III-1.1 est un schéma très général de l'expérience correspondante

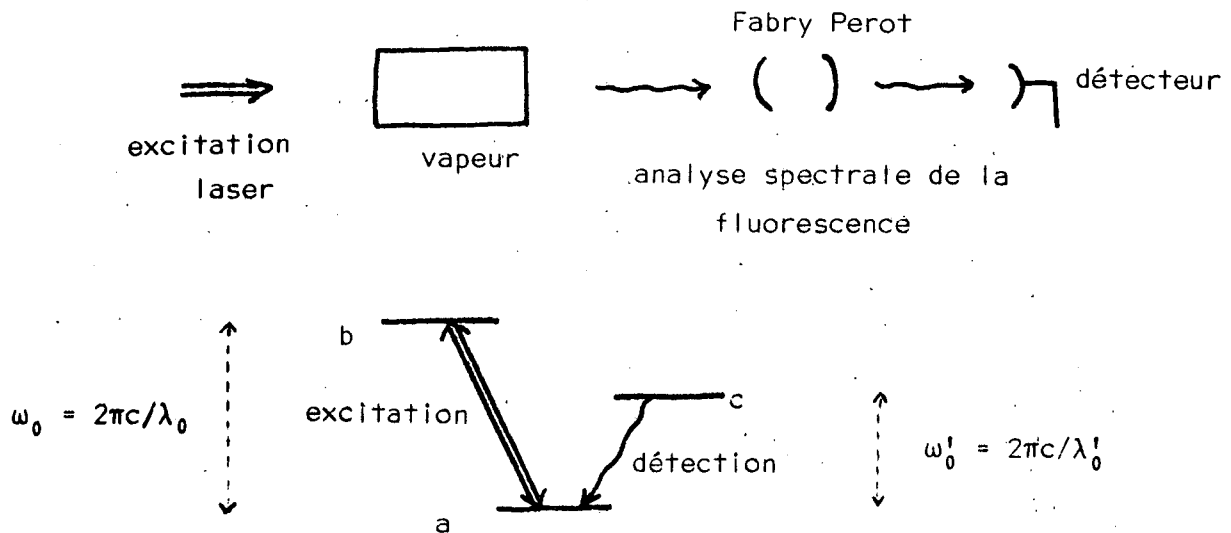


Fig III-1.1 Schéma de l'expérience de compensation de l'effet Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse.

Nous avons cherché un système atomique permettant de mettre en évidence l'effet de compensation ; nous avons été guidés dans cette recherche par les conditions suivantes , imposées par l'étude théorique :

- la première condition porte sur les moments cinétiques J_a , J_b , J_c des niveaux a, b et c ; dans le § II-4 nous avons étudié le cas $J_a=0$, $J_b = J_c=1$ nous verrons que l'effet de compensation peut être aussi observé avec d'autres configurations ; les moments cinétiques doivent toutefois être entiers et de préférence petits ; il vaut mieux de plus éviter toute structure hyperfine qui compliquerait le problème.

- pour observer l'effet de compensation, il faut que la fréquence de Rabi ω_1 soit la plus grande possible, en tout cas plusieurs fois plus grande que la largeur homogène γ ; il faut donc que la transition saturée ait une force d'oscillateur suffisamment grande et qu'elle se trouve dans un domaine de longueur d'onde où l'on dispose de lasers à colorant monomodes de puissance suffisante, c'est-à-dire pratiquement, dans le domaine de la Rhodamine ($\lambda_0 \sim 6000 \text{ \AA}$).

- l'effet de compensation n'existe que si la fréquence ω'_0 de la transition de détection est plus petite que celle ω_0 de la transition saturée ($s = \omega'_0/\omega_0 = \lambda_0/\lambda'_0 < 1$) ; la valeur optimale serait $s = 0,5$ ($\lambda'_0 = 1,2 \mu$) mais on peut observer l'effet dès que λ'_0 est différent de λ_0 d'au moins 10 à 15% ; d'autre part il faut disposer de détecteurs ayant de bonnes qualités-bon rendement quantique, faible bruit- à la longueur d'onde λ'_0 ; ces deux conditions imposent en pratique que λ'_0 soit compris entre 7000 $\text{\AA}$ et 8000 $\text{\AA}$.

- le signal est proportionnel à la population π_c du niveau émetteur c (Fig III-1.1) ; or, c'est là une caractéristique essentielle de l'effet de compensation, le niveau c n'est pas couplé au laser ; il doit donc être peuplé d'une manière différente, par exemple par une décharge.

Ces conditions nous ont conduits à choisir de faire l'étude expérimentale sur l'atome de Néon : la réalisation de décharges de Néon est aisée, l'isotope principal ^{20}Ne ne présente pas de structure hyperfine, son spectre est suffisamment riche pour fournir plusieurs schémas de niveaux a, b, c correspondant aux conditions énoncés ci-dessus. Sur la Fig III-1.2 sont représentés les trois schémas qui nous ont semblé les plus favorables et que nous avons étudiés expérimentalement.

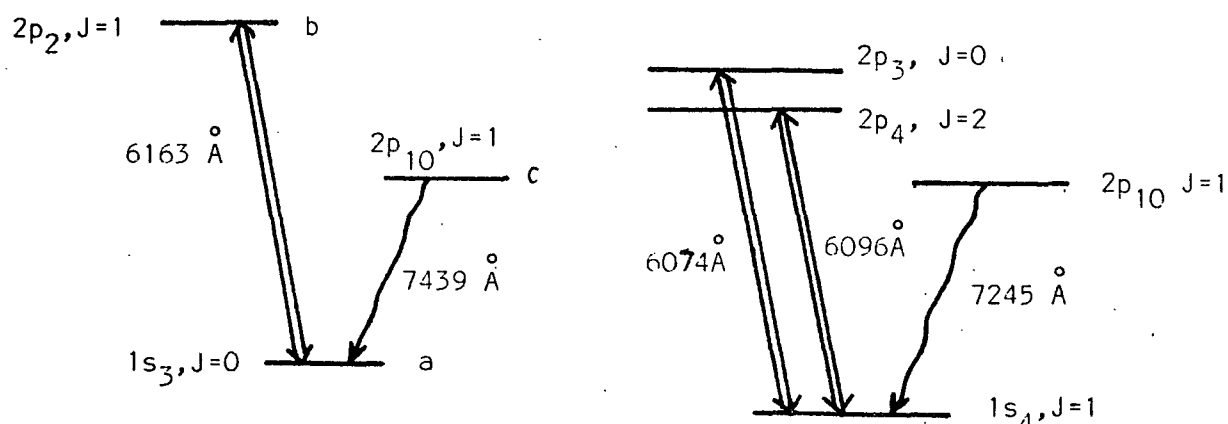


Fig III-1.2 Les trois schémas étudiés dans le ^{20}Ne (notation des niveaux selon les conventions de Paschen).

Le premier schéma que nous noterons $6163 \text{ \AA} / 7439 \text{ \AA}$ (saturation de la transition $\lambda_0 = 6163 \text{ \AA}$, observation de la fluorescence émise sur la transition $\lambda'_0 = 7439 \text{ \AA}$) correspond exactement au système étudié dans la deuxième partie ($J_a = 0$, $J_b = J_c = 1$); c'est avec ce schéma qu'a été obtenue la première mise en évidence expérimentale de l'effet de compensation.

Le second schéma $6074 \text{ \AA} / 7245 \text{ \AA}$ correspond à une situation légèrement différente : la dégénérescence Zeeman se trouve dans le niveau inférieur a de la transition ab saturée (on a $J_a = 1$, $J_b = 0$ et non $J_a = 0$, $J_b = 1$ comme précédemment). Si le laser a une polarisation σ , trois niveaux atomiques sont couplés au laser (b et les deux sous niveaux $m = \pm 1$ de a); la seule différence importante de ce système avec le précédent est qu'il présente d'intéressants effets de polarisation.

Enfin, le troisième schéma $6096 \text{ \AA} / 7245 \text{ \AA}$ correspond à des moments cinétiques plus grands ($J_b = 2$, $J_a = J_c = 1$); les huit sous niveaux de a et b sont couplés au laser de polarisation σ ; nous verrons que l'on peut encore observer l'effet de compensation dans cette situation et que malgré la plus grande complexité du problème, on peut comprendre l'allure des spectres

L'effet de compensation de l'effet Doppler par les déplacements lumineux dépendant de la vitesse se manifeste aussi si, au lieu d'observer la fluorescence émise sur la transition ca (Fig III-1.1), on étudie l'absorption d'une faisceau laser sonde sur cette même transition.

Cette détection en absorption demande bien entendu la mise au point d'un deuxième laser, accordable autour de λ'_0 . Elle est de plus moins pure que la détection en fluorescence; en effet, pour une expérience en fluorescence telle que celle de la Fig III-1.1, la population du niveau émetteur c n'est pas du tout modifiée par la présence du laser saturant la transition ba (pas d'effets de population) et le seul effet responsable de l'apparition de structures est la modification de l'énergie de l'état final a de la transition ca; pour une expérience en absorption, le signal dépend de la population du niveau a et les structures résultent de la superposition de deux effets: d'une part, la modification de l'énergie de a, d'autre part, la variation des populations due à la saturation de la transition ba.

Toutefois la détection en absorption présente plusieurs avantages dont nous discuterons en détail plus loin et qui nous ont poussé à en entreprendre une étude expérimentale. Les transitions du Neon que nous avons étudiées sont représentées sur la Fig III-1.3.

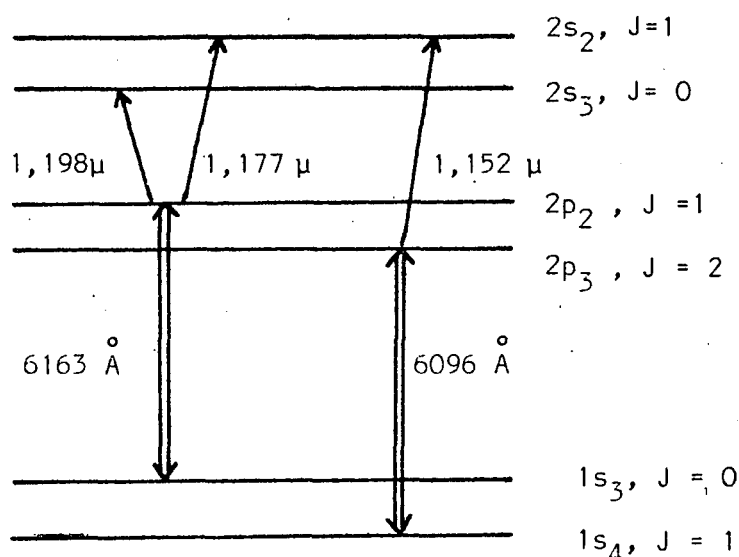


Fig III-1.3 Transitions étudiées en absorption

Les contraintes imposées à λ_0 sont les mêmes que pour les expériences en fluorescence ce qui explique que les transitions choisies soient aussi les mêmes. Par contre, les conditions sur les transitions de détection sont tout à fait différentes : il faut ici disposer d'un laser, pas nécessairement intense, mais monomode à λ_0 ; nous avons donc choisi des transitions pour lesquelles on peut réaliser un laser Helium-Néon. Les schémas $6163 \text{ Å}/1,198 \mu$ et $6163 \text{ Å}/1,177 \mu$ correspondent à la situation la plus simple où seulement trois sous niveaux sont couplés avec le laser. Le schéma $6096 \text{ Å}/1,152 \mu$ correspond à des moments cinétiques plus élevés (1,2 et 1). Remarquons que les configurations de la Fig III-1.3 sont des configurations "dépliées" (voir § II-3) et que l'effet de compensation sera donc observé dans la direction arrière (faisceaux saturant et sonde se propageant en sens inverse) et non dans la direction avant.

Nous allons maintenant décrire le montage expérimental (§ III-2), présenter les résultats que nous avons obtenus (§ III-3) et enfin discuter d'éventuels prolongements et applications de cette méthode (§ III-4).

C H A P I T R E III-2

LE MONTAGE EXPERIMENTAL

L'ensemble du montage est fixé sur une dalle en granit. Nous décrivons successivement les quatre grandes parties du montage :

- « la partie excitation, dont l'élément essentiel est le laser à colorant (§ III-2.1)
- « les cellules à décharge (§ III-2.2)
- « le montage pour la détection en fluorescence (§ III-2.3)
- « le laser Helium Neon pour la détection en absorption (§ III-2.4)

III-2.1 La partie excitation

La partie excitation du montage expérimental est représentée sur la Fig III-2.1 . Elle comprend le laser à colorant lui même , un certain nombre d'éléments permettant de contrôler son fonctionnement et des éléments optiques.

Laser à colorant

Nous avons utilisé un laser à colorant CR 599 pompé par un laser à Argon ionisé SP 171. C'est en effet un laser qui offre une puissance importante en oscillation monomode avec un bruit en fréquence ("jitter") très réduit par un asservissement sur une cavité de référence thermostatée. Obtenir simultanément ces diverses caractéristiques qui nous étaient nécessaires s'est en fait révélé un problème assez difficile. Pour le résoudre, nous avons été amenés à considérer comme essentiel le réglage initial de la cavité laser (en l'absence de tout élément sélectif) de façon à optimiser non seulement la puissance de sortie (puissance multimode) mais aussi le profil transverse du mode. A puissance multimode égale, la puissance obtenue en oscillation monomode et la stabilité de cette oscillation sont d'autant meilleures que le profil transverse du mode est plus proche du profil gaussien idéal (mode TEM₀₀).

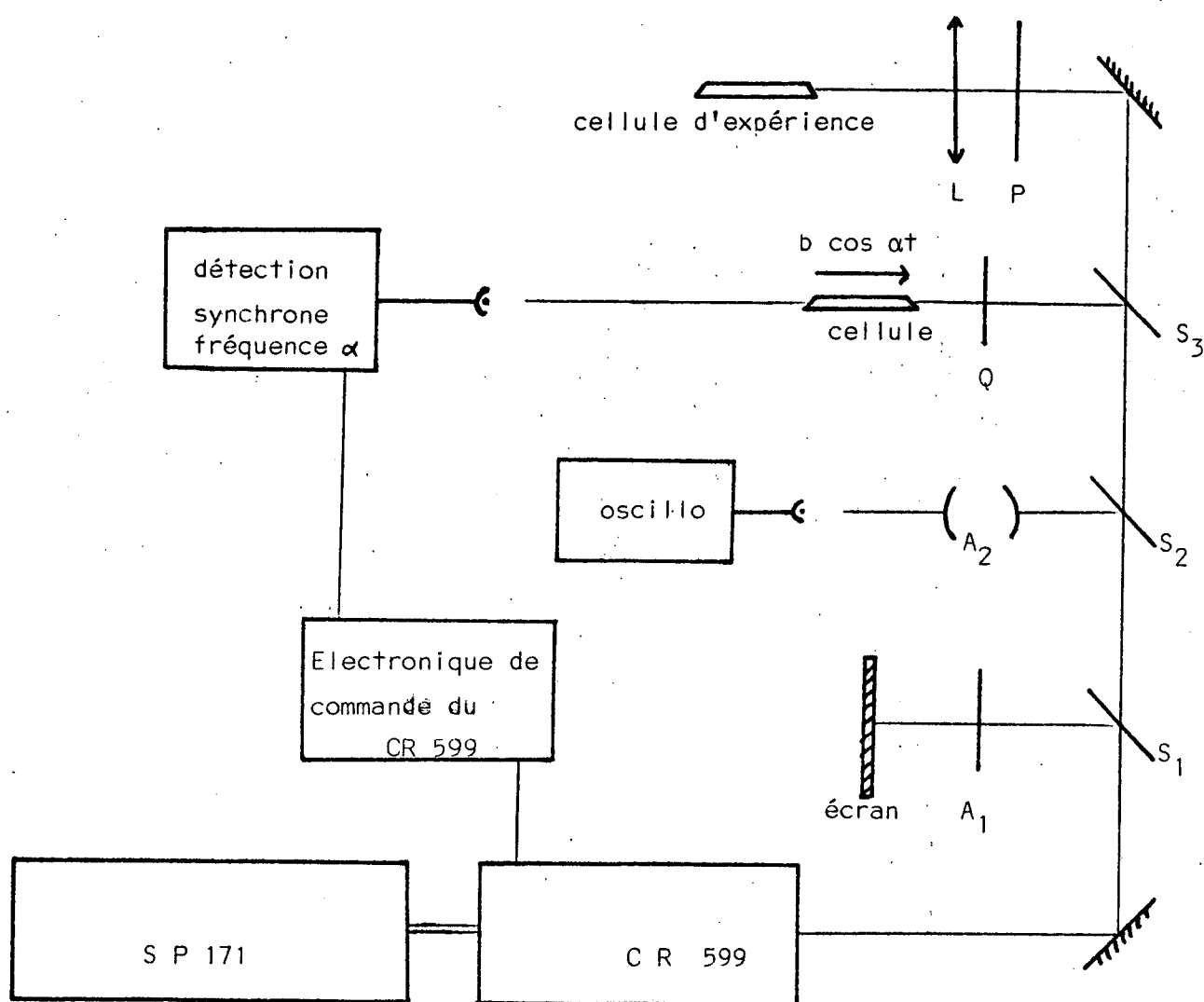


Fig III-2.1 : Schéma de la partie excitation du montage expérimental

SP 171 Laser à Argon ionisé

CR 599 Laser à colorant

A_1 et A_2 Analyseurs (contrôle du mode)

S_1, S_2, S_3 Lames prélevant une faible partie du faisceau

Q Lame quart d'onde

L lentille

P Polariseur

☉ Détecteur

Deux paramètres critiques pour obtenir ce mode gaussien sont la position des miroirs de repli ("folding mirror" qui impose la taille géométrique du mode [D_n]) et de focalisation ("pump mirror" qui adapte le mode du laser de pompe avec le mode de la cavité), mais le paramètre le plus important est certainement, d'après notre expérience, la qualité du mode transverse du laser à Argon ; nous avons en effet souvent constaté qu'une diminution des performances du laser à colorant correspondait à une dégradation du mode de pompe et non pas , comme on pourrait le croire à priori, à une dégradation du réglage de la cavité.

Nous avons habituellement réglé la puissance du laser à Argon ionisé à 4W sur la raie verte à $5145 \text{ \AA}$ (courant de décharge de 31A à 34 A selon le réglage du tube). Nous avons utilisé un réseau de diodes (Reticon) qui permet une observation précise du profil transverse du mode laser ; nous avons ainsi constaté que l'observation du mode sur un écran après réflexion sur un miroir concave qui constitue le moyen habituel de contrôle du mode, n'est pas du tout un moyen suffisant.

Dans ces conditions, nous obtenons de manière reproductible, à la sortie du laser à colorant, une puissance multimode de 1,35 W (pour 4W de puissance de pompe, soit un rendement de 34%) avec un très beau mode transverse (lui aussi contrôlé avec le réseau de diodes). En introduisant dans la cavité laser les trois éléments sélectifs (un filtre de Lyot et deux étalons de Fabry-Pérot), on obtient une puissance monomode de 350mW (9% de rendement) à la longueur d'onde (environ $5900 \text{ \AA}$) où la Rhodamine 6G a sa meilleure efficacité ; de 250 mW à $6074 \text{ \AA}$ et 180 mW à $6163 \text{ \AA}$. On peut améliorer ces chiffres en augmentant la puissance de pompe jusqu'à 6W ; la puissance monomode augmente à peu près proportionnellement mais la stabilité de l'oscillation laser diminue et le réglage doit être refait de plus en plus souvent.

Eléments de contrôle

Les trois lames quasi transparentes S_1 , S_2 et S_3 de la Fig III-2.1 réfléchissent une faible fraction du faisceau vers des éléments de contrôle ou de stabilisation :

- S_1 envoie un faisceau dans un premier analyseur A_1 composé d'une première lentille qui fait diverger le faisceau, d'une lame de silice avec un traitement réfléchissant sur chaque face, et d'une deuxième lentille qui fait l'image des anneaux d'interférence sur un écran ; l'intervalle spectral libre de A_1 ,

90 GHz, permet de repérer de façon très commode la position de la résonance du Néon (cet analyseur permet en fait d'éviter l'utilisation d'un spectromètre dans la recherche de la résonance monomode).

- S_2 dirige une partie du faisceau sur un deuxième analyseur A_2 , un Fabry-Pérot confocal d'intervalle spectral libre 1,5 GHz, balayé en fréquence ; on contrôle ainsi en permanence le caractère monomode du laser et son balayage en fréquence.

- le système d'asservissement de la fréquence du CR 599 par utilisation d'une cavité de référence thermostatée réduit considérablement le bruit en fréquence ("jitter" de 30 MHz sans l'asservissement, de 1 à 2 MHz avec) mais il n'élimine pas la dérive à long terme de cette fréquence ; pour pouvoir faire des séries d'enregistrements, nous avons donc asservi la fréquence du laser sur la fréquence atomique ω_0 . Dans ce but, nous faisons passer un faisceau (prélevé par S_3 ; voir Fig III-2.1) à travers une cellule de Néon absorbante ; le faisceau est polarisé circulairement par traversée d'une lame quart d'onde Q ; la cellule est placée dans un champ magnétique axial $b \cos \alpha t$; la composante à la fréquence α de l'absorption est extraite du signal par une détection synchrone ; cette composante varie en fonction de la fréquence du laser comme une courbe de dispersion centrée en ω_0 ; elle fournit donc un signal d'erreur qui permet, en réagissant sur l'électronique de commande du CR 599, de supprimer la dérive de fréquence du laser. Si l'on utilise une constante de temps suffisamment longue et un gain de boucle adapté, le bruit de fréquence du laser n'est pas augmenté.

Eléments optiques

Le faisceau laser est focalisé dans la décharge de Néon par la lentille L . A puissance laser égale, la fréquence de Rabi ω_1 est d'autant plus grande que le rayon du faisceau laser ("waist") dans la décharge est plus petit. Nous allons voir toutefois que la focalisation du faisceau est limitée par la détection.

La polarisation du laser n'étant pas parfaitement linéaire à l'entrée de la cellule, on insère dans le trajet du faisceau un polariseur P (biprisme de Glan-Thompson).

III-2.2 Les cellules à décharge

La première cellule utilisée dans nos expériences est représentée sur la Fig III-2.2

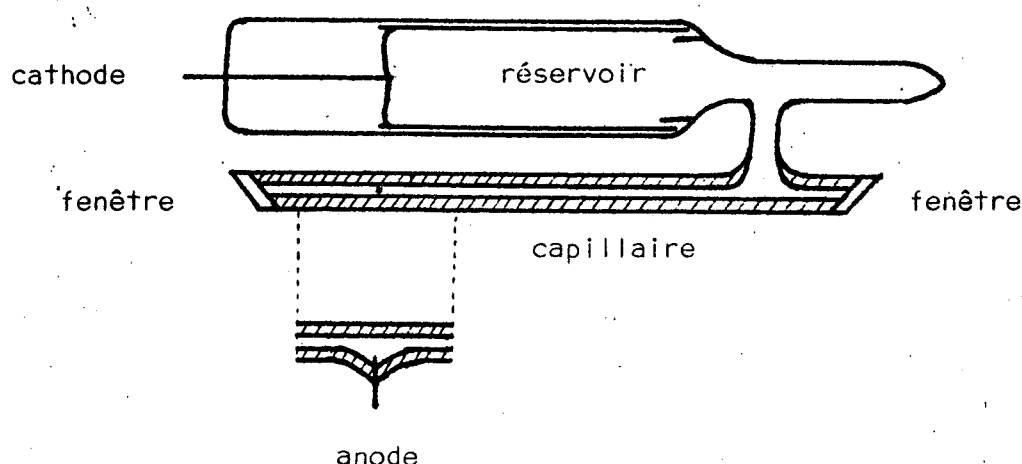


Fig III-2.2 Dessin (à l'échelle 1/2) d'une cellule à décharge réalisée en Pyrex (fabrication SVT)

Le faisceau laser passe à l'intérieur du capillaire (diamètre intérieur 3mm) et traverse les deux fenêtres en Pyrex adhérentes ("soudage poli optique") aux deux extrémités du capillaire (à l'angle de Brewster). On établit une décharge continue dans la cellule en appliquant une haute tension entre l'anode ("passage verre-métal" dans l'épaisseur du capillaire) et la cathode cylindrique qui se trouve dans la partie "réservoir de gaz" de la cellule.

La cathode, en aluminium très pur, est dégazée en profondeur avant le montage de la cellule. Puis la cellule elle-même est dégazée pendant plusieurs jours. Elle est enfin remplie de ^{20}Ne très pur et scellée. Ces précautions, ainsi que la qualité de l'adhésion des fenêtres, permettent d'obtenir une durée de vie assez longue (plusieurs semaines d'utilisation pour une pression de remplissage de 0,6 Torr, plusieurs années pour 1,5 Torr).

La pression de ces cellules scellées est toujours assez élevée (en pratique supérieure à 0,5 torr). L'absorption du laser dans la cellule peut alors être importante de même que la réabsorption de photons de fluorescence

Ces deux effets étant très gênants, nous avons utilisé de nouvelles cellules, reliées directement à un banc de pompage. Ceci nous a permis de travailler à des pressions beaucoup plus basses (jusqu'à 0,25 Torr de Néon ; une cellule scellée remplie avec cette pression ne durerait que quelques heures) ; on peut même grâce au banc de pompage faire les réglages à pression élevée (1 à 2 Torr) puis diminuer la pression pour l'enregistrement.

Nous disposons de plusieurs cellules correspondant à diverses longueurs de décharge et à deux positions des fenêtres, normales ou à l'angle de Brewster. Remarquons que les fenêtres des cellules reliées au banc de pompage peuvent être seulement collées ; elles peuvent par conséquent être en silice et avoir ainsi de meilleures qualités optiques.

La cellule est placée dans un champ magnétique continu, homogène à quelques % près sur toute la décharge et qui peut être soit dans l'axe du capillaire (ce qui permet une excitation et une détection en polarisation σ), soit dans la direction perpendiculaire (ce qui permet par exemple une excitation σ et une détection π).

III-2.3 Le montage de détection en fluorescence

Le montage de détection en fluorescence est schématisé sur la Fig III-2.3.

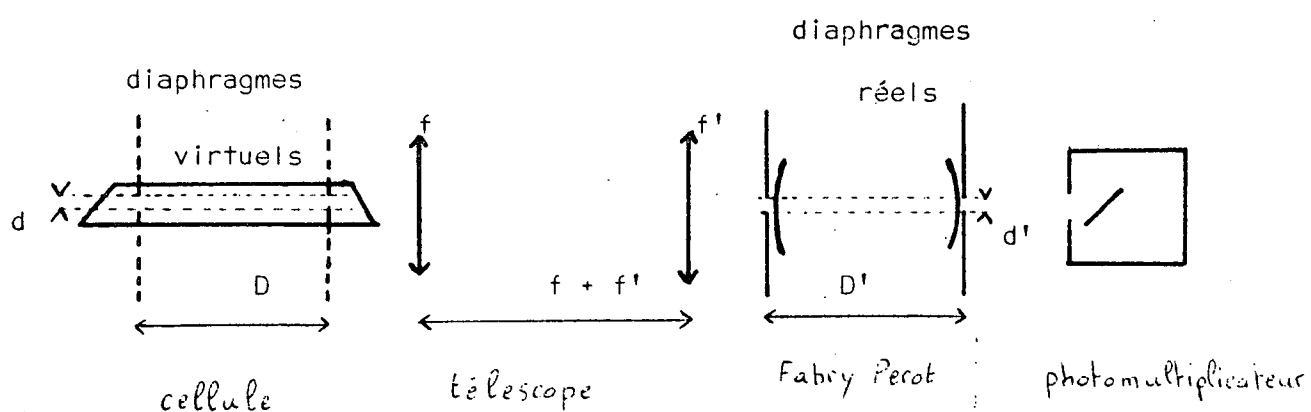


Fig. III-2.3 Schéma du montage de détection en fluorescence

La zone d'observation dans la décharge est un cylindre de diamètre d et de longueur D (Fig III-2.3) limité par deux "diaphragmes virtuels", images réciproques par le système optique des diaphragmes réels placés de part et d'autre du Fabry Pérot. Les valeurs de d et D sont pratiquement imposées ; en effet le signal est proportionnel d'une part au volume V observé et d'autre part à l'angle solide Ω de détection

$$V \Omega \sim (d^2 D) \times (d^2 / D^2) \sim d^4 / D \quad (\text{III-2.1})$$

$$\sim d^3 \theta \quad (\text{III-2.2})$$

avec $\theta = d/D \quad (\text{III-2.3})$

Pour avoir un bon signal, on a donc intérêt à ce que d et θ soient aussi grands que possible mais ces deux paramètres sont limités par d'autres considérations. L'angle d'observation θ est limité par le principe même de l'effet de compensation qui n'existe que dans une direction. Si l'on observe la fluorescence émise sous un angle θ (voir la remarque de la page 170), la résonance de compensation est élargie d'une quantité $\theta \cdot \Delta$ (largeur Doppler résiduelle) ; θ sera donc choisi pour que cet élargissement reste peu important. En pratique, on aura

$$\theta \sim 10^{-2} \quad (\text{soit } D = 100 d) \quad (\text{III-2.4})$$

Le diamètre d d'observation est, pour sa part, limité par le rayon w ("waist") du faisceau laser. En effet le champ électrique $\mathcal{E}$ de l'onde laser varie en fonction de la distance r à l'axe du faisceau :

$$\mathcal{E} = \mathcal{E}_0 \exp(-r^2/w^2) \quad (\text{III-2.5})$$

Il y a donc une certaine dispersion de la valeur de la fréquence de Rabi ω_1 pour les différents atomes situés dans la zone d'observation. L'effet de cette dispersion reste acceptable seulement pour d inférieur à w ; on choisira donc :

$$d \sim w \quad (\text{III-2.6})$$

Comme nous l'avons dit plus haut, l'effet de compensation est d'autant plus marqué que ω_1 est plus grand, donc que le laser est plus focalisé (w petit). Mais nous voyons ici que lorsqu'on focalise, le signal décroît comme w^3

(voir III-2.2 avec θ fixé et III-2.6). Le choix de w , et par conséquent de d , sera donc le résultat d'un compromis : meilleure focalisation compatible avec un signal suffisant ; dans les expériences dont nous donnons les résultats plus loin, w et d étaient d'environ 0,4mm.

Le système optique est un télescope de Kepler, composé de deux lentilles convergentes de focales f et f' séparées par la distance $f + f'$; le grandissement de ce système afocal est constant et égal à f'/f :

$$d'/d = f'/f \quad (\text{III-2.7})$$

Les deux diaphragmes réels sont identiques et les diaphragmes virtuels le sont donc aussi.

Pour l'analyse spectrale de la fluorescence, nous utilisons un Fabry Pérot confocal (Burleigh) ; l'épaisseur du Fabry Pérot (qui est égale à peu près à la distance D' entre les deux diaphragmes réels) a été déterminée d'après la résolution souhaitée : nous voulons que la fonction d'appareil du Fabry Pérot n'élargisse pas trop la résonance de compensation. Nous avons choisi une épaisseur de 10cm, correspondant à un intervalle spectral libre de 750 MHz ($c/4D'$ pour un Fabry Pérot confocal) ; avec une finesse effective de 50, nous avons ainsi obtenu une largeur d'analyse de 15 MHz. Les paramètres D , D' et d étant maintenant fixés, d' est imposé par la conservation de l'étendue optique

$$d'^2 / D = d^2 / D \quad (\text{III-2.8})$$

La valeur de d' ainsi obtenue est largement inférieure à la valeur critique au delà de laquelle la finesse est diminuée pour les aberrations sphériques [Dn^2]. La finesse est ainsi principalement déterminée par les défauts de surface des lames (une finesse de 50 correspond à une dispersion de l'épaisseur de l'étalon égale à $\lambda/200$ sur la surface utilisée). Pour obtenir cette finesse, le réglage de la confocalité est critique.

Le rapport f'/f des deux focales du télescope est déterminé par (III-2.7). Les valeurs de f et f' sont alors choisies d'après des considérations d'encombrement minimum (la longueur totale de la chaîne de détection est environ de 2m).

L'étalon de Fabry Pérot est enfermé dans une boîte qui augmente beaucoup l'inertie thermique et diminue la dérive en fréquence ; celle-ci

est ainsi largement inférieure à la largeur homogène pendant la durée d'un enregistrement.

Cette boîte contient aussi le photomultiplicateur ; elle est peinte en noir intérieurement ; elle possède une fenêtre constituée d'un (ou même plusieurs) filtres Schott laissant passer la fluorescence ($7245 \text{ \AA}$ ou $7439 \text{ \AA}$) mais arrêtant toutes les longueurs d'onde inférieures à $7000 \text{ \AA}$ en particulier celle du laser qui, sinon, détruirait le photomultiplicateur (d'après le principe même de l'expérience, le laser se propage dans l'axe de la chaîne de détection) ; enfin, un filtre interférentiel isolant la transition étudiée ($7245 \text{ \AA}$ ou $7439 \text{ \AA}$) est placé devant la fenêtre d'entrée du photomultiplicateur. Ces précautions permettent d'éliminer complètement toute lumière parasite.

Le photomultiplicateur (RCA 31034 A), refroidi à -20°C par effet Peltier, a un courant d'obscurité très faible (20 coups par seconde). Les impulsions fournies par le PM sont transmises à une électronique de comptage qui fournit un signal proportionnel au nombre d'impulsions dépassant un certain seuil pendant un certain temps (nombre que nous appelons désormais par commodité le nombre de photons détectés). Le seul bruit qui subsiste ainsi est le bruit quantique (sauf si le système est sensible à des parasites électroniques) : si le nombre de photons détectés par seconde est 10 000 et la constante de temps 1s, le rapport signal sur bruit est effectivement $(10\,000)^{1/2} = 100$ (voir plus loin les résultats expérimentaux).

L'alignement optique se fait en deux étapes successives. Dans un premier temps, on aligne avec un laser HeNe l'ensemble de la chaîne de détection : décharge, télescope, Fabry Péro, photomultiplicateur ; on place alors sur le faisceau HeNe deux diaphragmes à diamètre variable, situés de part et d'autre de la décharge et matérialisant ainsi l'axe de la chaîne de détection. Dans un deuxième temps, on agit sur les miroirs situés sur le trajet du faisceau issu du laser à colorant pour faire coïncider l'axe de ce faisceau avec l'axe défini par les deux diaphragmes. L'alignement réalisé, les deux diaphragmes auxiliaires sont ouverts au maximum pour ne pas gêner la propagation du faisceau laser pendant l'expérience.

Les spectres sont enregistrés sur une table traçante XY ; la tension en X est proportionnelle à la haute tension appliquée à la cale piézoélectrique

permettant de balayer le Fabry Péro (rappelons que la fréquence du laser à colorant reste en permanence accordée sur la fréquence atomique ω_0) ; la tension en Y est proportionnelle au nombre de photons détectés par seconde.

III-2.4 Le montage de détection en absorption

Nous avons construit un laser Helium Néon dans le but d'obtenir une oscillation laser continue et monomode aux longueurs d'onde $1,152 \mu$, $1,177 \mu$ et $1,198 \mu$ (observées dès 1961 [Dn 3]). Nous avons obtenu un fonctionnement monomode en plaçant à l'intérieur de la cavité un absorbant saturable constitué par une décharge de Néon [Dn 4]. Le laser comporte donc une décharge amplifiante, une décharge absorbante et un prisme placés dans une cavité à deux miroirs concaves (Fig III-2.4)

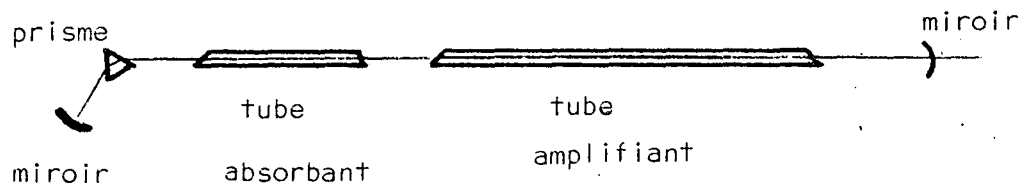


Fig. III-2.4 : Schéma du laser Hélium-Néon

Les deux cellules à décharge sont construites suivant le même principe que les cellules d'expérience (Fig III-2.2). Elles sont toutes les deux reliées au banc de pompage et possèdent des fenêtres en silice de bonne qualité optique collées aux extrémités du capillaire à l'angle de Brewster.

Le tube amplificateur possède un capillaire de longueur 1m, de diamètre intérieur 3mm ; il est rempli d'un mélange d'Hélium et de Néon (pression totale de 3 à 6 Torr, environ 15% de Néon) et est excité par une décharge continue ($i \approx 7\text{mA}$). Le tube absorbant (longueur 40cm, diamètre intérieur 4mm) est rempli de Néon pur (0,6 à 1 Torr, $i \approx 15 - 30 \text{ mA}$). On utilise du Néon naturel.

Les miroirs sont des miroirs concaves de rayon 2m placés à environ 2,6m l'un de l'autre (cavité très proche d'une cavité confocale, "waist" du mode de l'ordre de 0,6mm). L'un des miroirs est totalement réfléchissant (miroir MTO R_{max} , transmission inférieure à 0,3%), l'autre à une transmission de 1% ou de 2%.

En l'absence du prisme, le laser oscille à la longueur d'onde $1,152 \mu$ pour laquelle le gain est le plus important (puissance de sortie supérieure à 15 mW avec une transmission de 2%, 10mW avec 1%). Le prisme, de bonne qualité

optique, utilisé sous l'incidence de Brewster et à la déviation minimale (prisme équilatéral d'indice 1,73), permet de séparer les différentes longueurs d'onde (la variation de déviation est d'environ un milliradian entre $\lambda = 1,152\mu$ et $\lambda = 1,177\mu$ ou entre $\lambda = 1,177\mu$ et $\lambda = 1,198\mu$; la divergence du faisceau laser est de 0,6 milliradian).

Avec une transmission de 2%, on obtient une oscillation à $1,152\mu$ et $1,177\mu$ mais pas à $1,198\mu$ parce que le gain y est trop faible. Avec 1%, on obtient les trois longueurs d'onde : 10 mW à $1,152\mu$; 1,5 mW à $1,177\mu$; 0,3 mW à $1,198\mu$. Lorsque le tube absorbant est éteint, le laser oscille sur 7 ou 8 modes longitudinaux à $1,152\mu$ et $1,177\mu$, 2 ou 3 à $1,198\mu$ (gain plus faible) ; en ajustant la pression et le courant dans le tube absorbant, on obtient aisément une oscillation monomode avec une fraction importante ($>50\%$) de la puissance multimode. Le "jitter" est de l'ordre du MHz , la dérive du MHz par minute. Par contre les fluctuations d'intensité sont importantes surtout à $1,198\mu$. Pour diminuer le bruit très important dû à ces fluctuations d'intensité, on a réalisé le montage différentiel schématisé sur la Fig III-2.5.

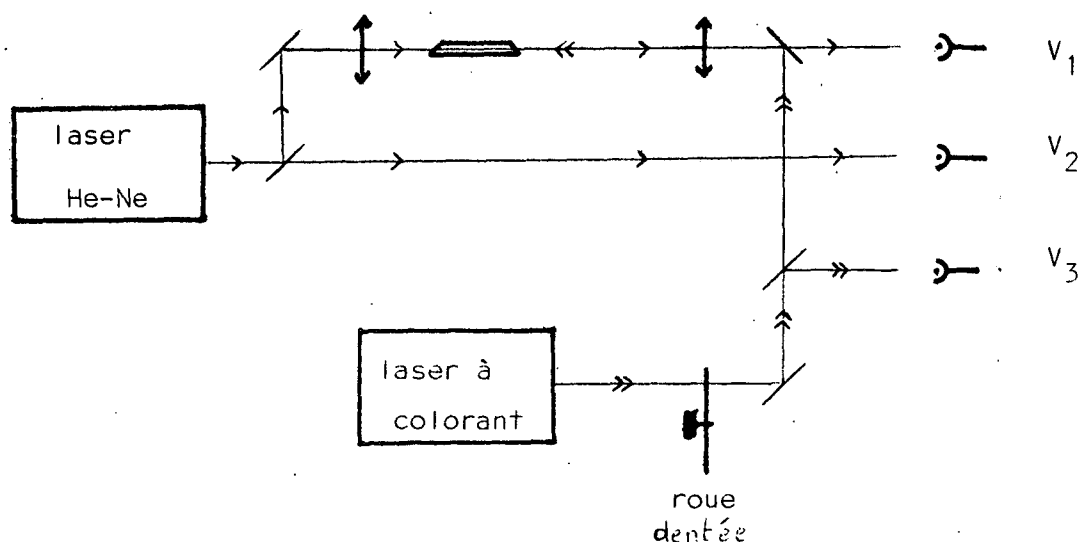


Fig III-2.5 Schéma simplifié du montage de détection en absorption . La tension V_1 (resp. V_2) est proportionnelle à l'intensité du faisceau laser après (resp. avant) absorption. Le faisceau saturant est coupé par une roue dentée . On mesure la modulation de $(V_1 - V_2)$ en phase avec la tension de référence V_3 .

Le signal ainsi obtenu est proportionnel à la différence entre l'absorption en présence de laser saturant et l'absorption en l'absence de laser saturant. On obtient un bon rapport signal sur bruit avec des constantes de temps de 10 à 100ms. Le balayage (par cale piézoélectrique) est limité à 150 MHz, ce qui est insuffisant pour l'ensemble du spectre, mais suffisant pour le pic de compensation ; dans les enregistrements présentés plus loin, on balaye en fait la fréquence du laser à colorant (on peut montrer qu'une variation $\Delta\nu$ de la fréquence du laser à colorant est équivalente à une variation $\Delta\nu/2$ de celle du laser He-Ne).

La cellule d'expérience est du même type que celles utilisées dans les expériences en fluorescence (Fig III-2.2) : cette cellule est reliée au banc de pompage, ce qui permet de faire les réglages optiques à pression élevée (1 à 2 Torr ; signal important) puis de diminuer la pression pour l'enregistrement (0,25 Torr, largeur collisionnelle faible).

Dans les expériences d'absorption, le signal ne diminue pas quand on focalise le faisceau sonde. On a donc intérêt à focaliser le plus possible le faisceau sonde pour pouvoir aussi focaliser le faisceau pompe et ainsi augmenter w_1 . Mais on est alors limité par la divergence du faisceau sonde due à la diffraction. On montre dans l'appendice A3 qu'il existe une valeur optimale pour le "waist" w_S du faisceau sonde, correspondant (à peu près) à la situation où la longueur de divergence du faisceau sonde $2\pi w_S^2/\lambda_S$ est adaptée à la longueur de la décharge l (Fig. III-2.6)

$$2\pi w_S^2/\lambda_S = l \quad (\text{III-2.9})$$

$$w_S^2 = l\lambda_S/2\pi$$

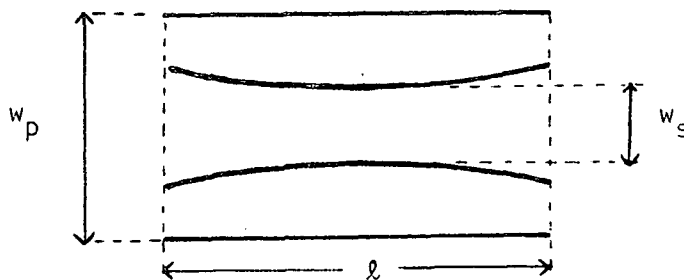


Fig III-2.6 Disposition des faisceaux pompe et sonde dans la décharge de longueur l : le waist w_S du faisceau sonde est choisi pour que $l = 2\pi w_S^2/\lambda_S$; le "waist" w_p de pompe est plus grand pour que les atomes contribuant au signal voient sensiblement la même intensité laser.

Dans ces conditions, la dispersion relative des valeurs de ω_1 est donnée par

$$\begin{aligned} \Delta\omega_1 / \omega_1 &= w_S^2 / w_p^2 \\ &= \ell \lambda_S / (2 w_p^2) \end{aligned} \quad (\text{III-2.10})$$

(relation démontrée dans l'appendice A3). On a donc intérêt à ce que la décharge soit courte ; pour conserver un signal suffisant, nous avons choisi $\ell = 4\text{cm}$, ce qui correspond à un "waist" $w_S = 90\text{ }\mu\text{m}$ que l'on obtient en focalisant le faisceau sonde dans la cellule avec une focale 200mm.

Lorsqu'on focalise le faisceau pompe, la fréquence de Rabi augmente comme l'inverse de w_p mais la dispersion $\Delta\omega_1$ augmente beaucoup plus vite (comme w_p^{-3} d'après III-2.10). Cette augmentation de la dispersion limite beaucoup les possibilités d'augmenter ω_1 par focalisation (on reprendra cette discussion plus loin).

Remarque :

Notons que le laser fournit aussi une oscillation monomode à $1,162\text{ }\mu$. Nous n'avons pas utilisé cette possibilité parce que la longueur d'onde correspondant pour le laser à colorant ($6266\text{ }\text{\AA}$) est moins intéressante que celles qui correspondent à $1,152\text{ }\mu$, $1,177\text{ }\mu$ et $1,198\text{ }\mu$ (voir figure III-1.3).

C H A P I T R E III-3

PRESENTATION DES RESULTATS EXPERIMENTAUX

Nous présentons d'abord les résultats relatifs au schéma de niveaux $6163\overset{\circ}{\text{\AA}}/7439\overset{\circ}{\text{\AA}}$ et correspondant à la première mise en évidence expérimentale de l'effet de compensation (§ III-3.1). Nous passons ensuite au schéma de niveaux $6074\overset{\circ}{\text{\AA}}/7245\overset{\circ}{\text{\AA}}$ pour lequel existent des effets de polarisation importants (§ III-3.2). Puis nous donnons les résultats des expériences menées en absorption sur les schémas $6163\overset{\circ}{\text{\AA}}/1,198\mu$ et $6163\overset{\circ}{\text{\AA}}/1,177\mu$ (§ III-3.3).

Ces trois premiers paragraphes sont consacrés à des expériences où le laser, de polarisation σ , sature une transition 0-1 ; trois sous niveaux Zeeman sont alors couplés au laser. Dans le dernier paragraphe (§ III-3.4) nous présentons les résultats relatifs aux schémas $6096\overset{\circ}{\text{\AA}}/7245\overset{\circ}{\text{\AA}}$ en fluorescence et $6096\overset{\circ}{\text{\AA}}/1,152\mu$ en absorption ; le laser sature alors une transition 1-2 et huit sous niveaux Zeeman sont couplés au laser. Nous montrons que l'on peut, dans cette situation plus compliquée, comprendre l'allure des spectres et que le phénomène de compensation existe encore.

III-3.1 Première mise en évidence expérimentale ($6163\overset{\circ}{\text{\AA}}/7439\overset{\circ}{\text{\AA}}$)

La première mise en évidence expérimentale de l'effet de compensation [Bf 2] a été réalisée en saturant avec un laser de polarisation σ la transition $1S_3-2p_2$ ($6163\overset{\circ}{\text{\AA}}$) et en observant la fluorescence en polarisation π sur la transition $2p_{10}-1S_3$ ($7439\overset{\circ}{\text{\AA}}$) (voir Figure III-1.2). Ce schéma de niveaux correspond exactement à celui décrit dans la deuxième partie (voir la Fig II-1.6 et la discussion page 130).

Les résultats sont représentés sur la Fig III-3.1 : on a porté dans la colonne de gauche les courbes expérimentales obtenues pour différentes valeurs du champ magnétique et dans la colonne de droite les courbes théoriques

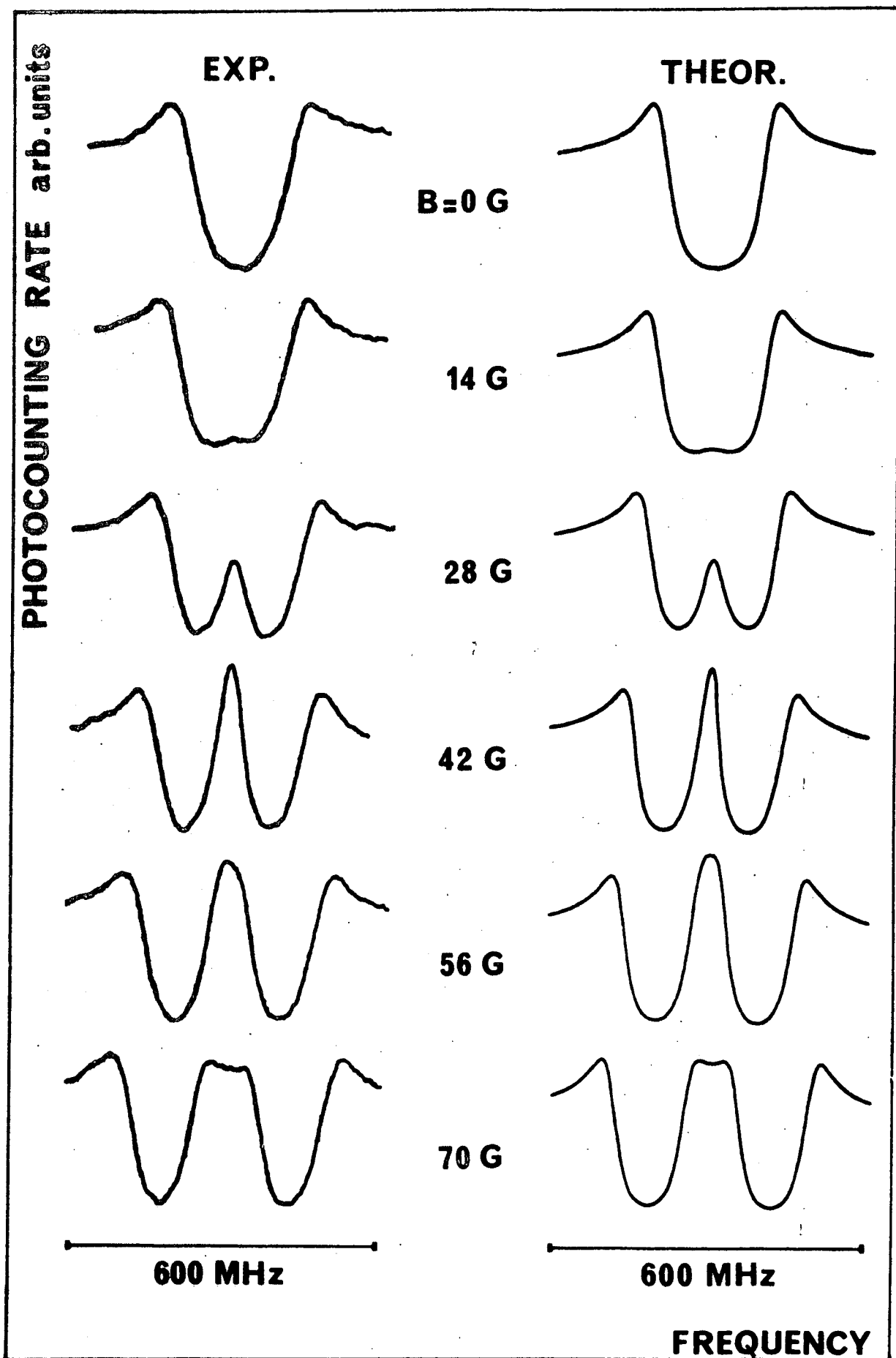


Fig III-3.1 Réseaux expérimental et théorique correspondant au schéma $6163 \text{ \AA}/7459 \text{ \AA}$ (détection π)

calculées par la méthode algébrique exposée dans la quatrième partie.

En champ nul ($B=0G$), on observe le doublet Autler Townes [Be 3] décrit dans le § 11-3. Lorsqu'on augmente progressivement le champ magnétique, l'allure du spectre est modifiée : une structure étroite apparaît au centre du "trou Autler Townes", croît progressivement jusqu'à une valeur maximale sans s'élargir puis s'élargit et se dédouble. Pour la valeur optimale $B=42G$, ω_1 et δ satisfont à la condition de compensation

$$\delta = \omega_1 \sqrt{(1-s)/(2s)} \quad (III-3.1)$$

(condition 11-4.10 page 165). La largeur de la résonance de compensation (60 MHz) est beaucoup plus petite que la largeur Doppler (1100 MHz à mi-hauteur), plus petite aussi que la fréquence de Rabi ω_1 (environ 200MHz pour une puissance de 100 mW et un waist de 400 μm), et du même ordre que la largeur homogène (émission spontanée 10MHz, largeur collisionnelle estimée à 30 MHz pour une pression égale à 1,5 Torr, largeur d'analyse du Fabry Pérot 15 MHz)

Remarques :

(i) Les courbes expérimentales de la Fig III-3.1 correspondent à la détection de 10000 coups par seconde et à un temps d'intégration de 1s. On constate que le rapport signal sur bruit est, comme prévu, de l'ordre de 100. Du nombre de photons détectés par seconde, on peut déduire une estimation du nombre d'atomes dans le niveau émetteur $2p_{10}$; on obtient une densité de l'ordre de 10^8 atomes par cm^3 (pour une décharge continue de 16mA dans 1,5 Torr de Néon).

(ii) Le spectre en champ magnétique nul de la Fig III-3.1 constitue, à notre connaissance, la première observation de l'effet Autler Townes sur un signal d'émission spontanée à partir d'un niveau non couplé au laser. Il est bien connu que les spectres Autler Townes sont dissymétriques lorsque la fréquence laser n'est pas accordée sur la fréquence atomique [Bd4] . Cet effet est illustré par les trois spectres de la Fig III-3.2 ; les spectres théoriques sont en très bon accord avec ces spectres expérimentaux.

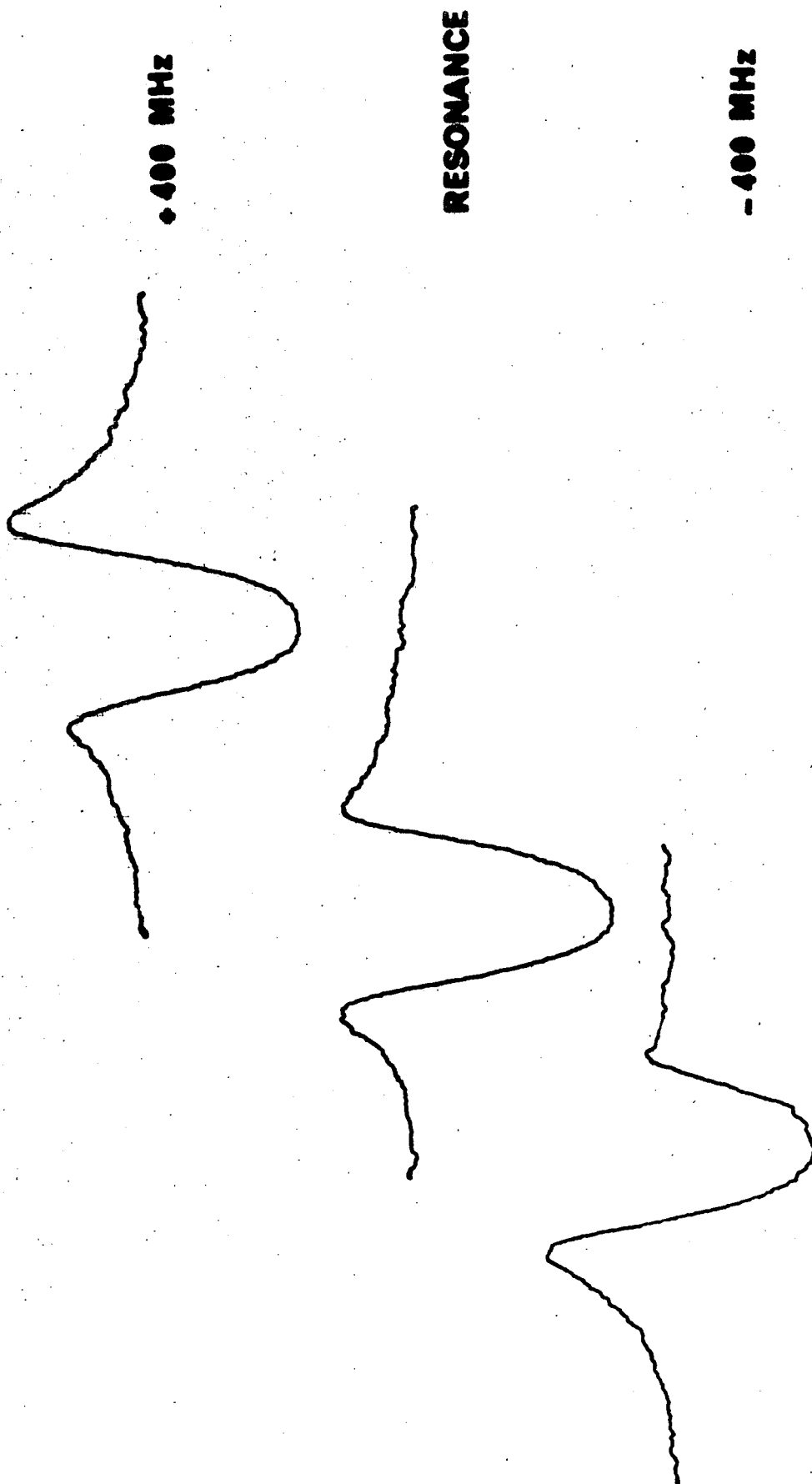


Fig III-3.2 : Lorsque le laser est désaccordé de la résonance atomique ($\omega_L \neq \omega_0$), le doublet Autler Townes (champ magnétique nul) devient dissymétrique .

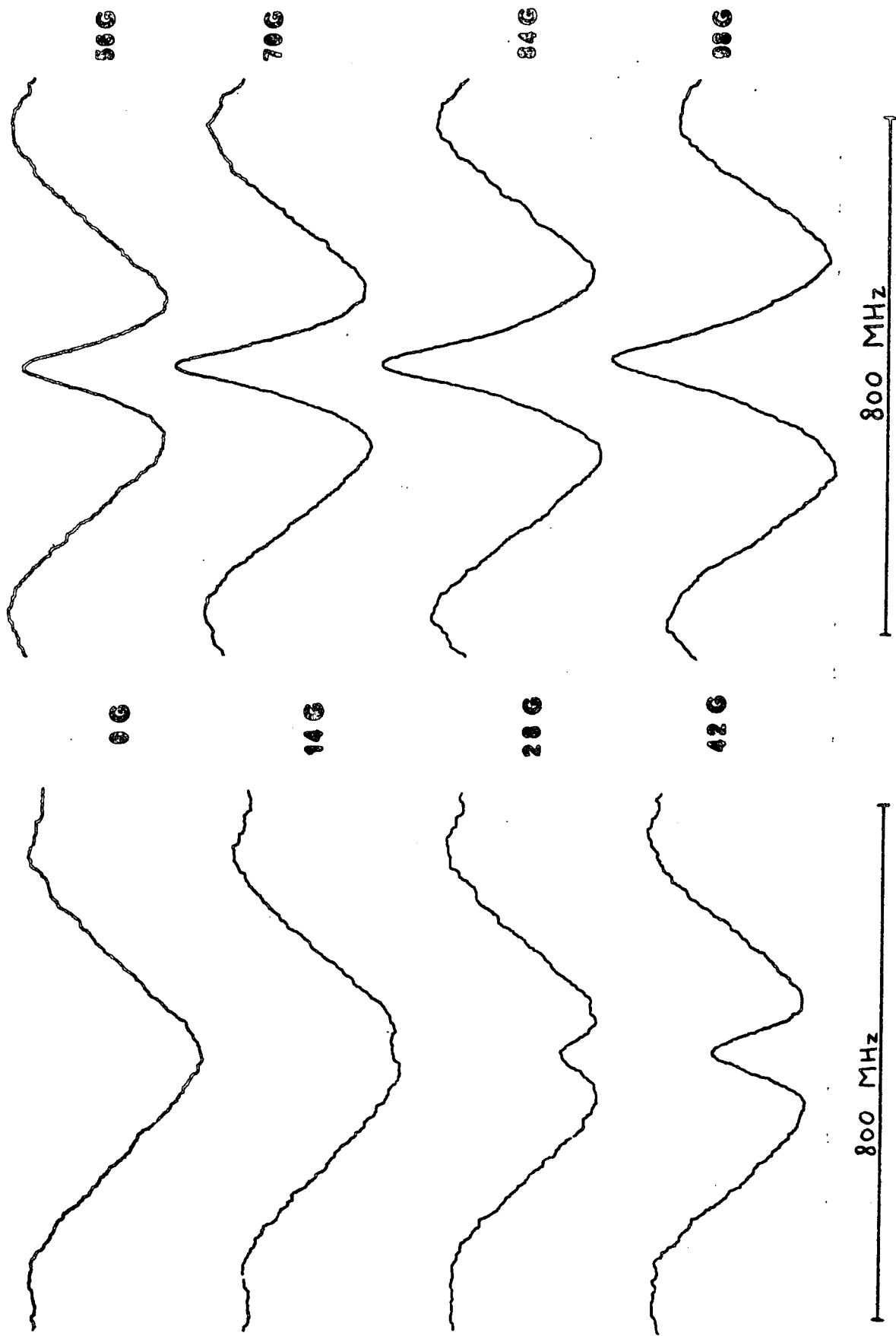


Fig III-3.3 : Réseau expérimental enregistré dans les mêmes conditions que celui de la Fig III-3.1 mais avec un laser plus focalisé ($w = 170\mu$ au lieu de 400μ)

(iii) Le cylindre d'observation dans la décharge (voir § III-2.3) a un diamètre d égal au "waist" du faisceau laser. Il y a donc dans ce cylindre une certaine dispersion de ω_1 dont nous avons tenu compte en calculant les spectres théoriques de la Fig III-3.1. Si l'on focalise plus le laser, on obtient des spectres tels que ceux de la Fig III-3.3. Le "waist" étant plus petit, la fréquence de Rabi ω_1 est plus grande ; ceci se manifeste à la fois par l'échelle en abscisse des spectres (plus grande que sur la Fig III-3.1) et par la valeur plus élevée du champ magnétique correspondant à la compensation (de l'ordre de 84 G alors qu'il était égal à 42G sur la Fig III-3.1). Mais le "waist" est maintenant plus petit que le diamètre d'observation ($w=170 \mu$, $d=400 \mu$) et les valeurs de ω_1 sont donc très dispersées (pratiquement de 0 à 100% de la valeur maximale), ce qui se traduit par la forme "triangulaire" des spectres. Nous avons vérifié que les spectres théoriques correspondant à des valeurs de ω_1 très dispersées reproduisaient bien cette forme triangulaire.

III-3.2 Schéma de niveaux présentant des effets de polarisation ($6074 \text{ \AA}/7245 \text{ \AA}$)

Lorsqu'on sature la transition à $6074 \text{ \AA}$ et qu'on observe la fluorescence à $7245 \text{ \AA}$ (Fig III-1.2), le schéma de niveaux est légèrement différent du précédent ; en effet la structure Zeeman est maintenant dans le niveau a inférieur de la transition saturée ab (Fig III-3.4 à comparer avec la Fig II-1.6 page 130)

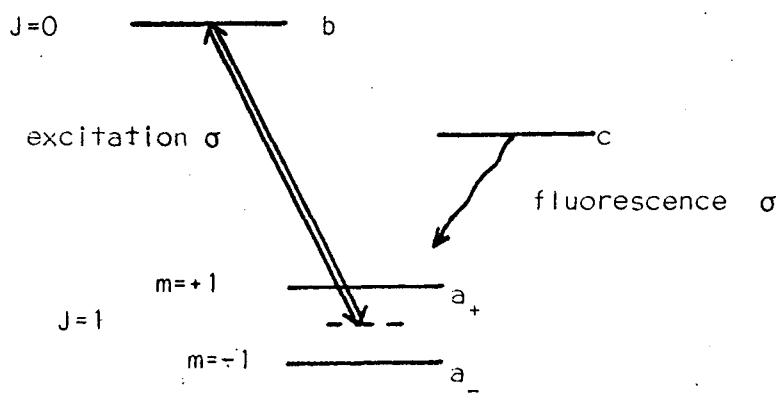


Fig III-3.4 : Les sous niveaux $b(2p_3, J=0)$, a_+ et a_- ($1s_4, J=1$, $m=+1$ et $m=-1$) sont couplés au laser. On observe la fluorescence émise en polarisation σ de c ($2p_{10}, J=1$, $m=0$) vers a_+ et a_- . Le sous niveau a_0 n'intervient pas dans le problème.

Chaque atome émet trois fréquences dont l'interprétation perturbative est donnée sur la Figure III-3.5

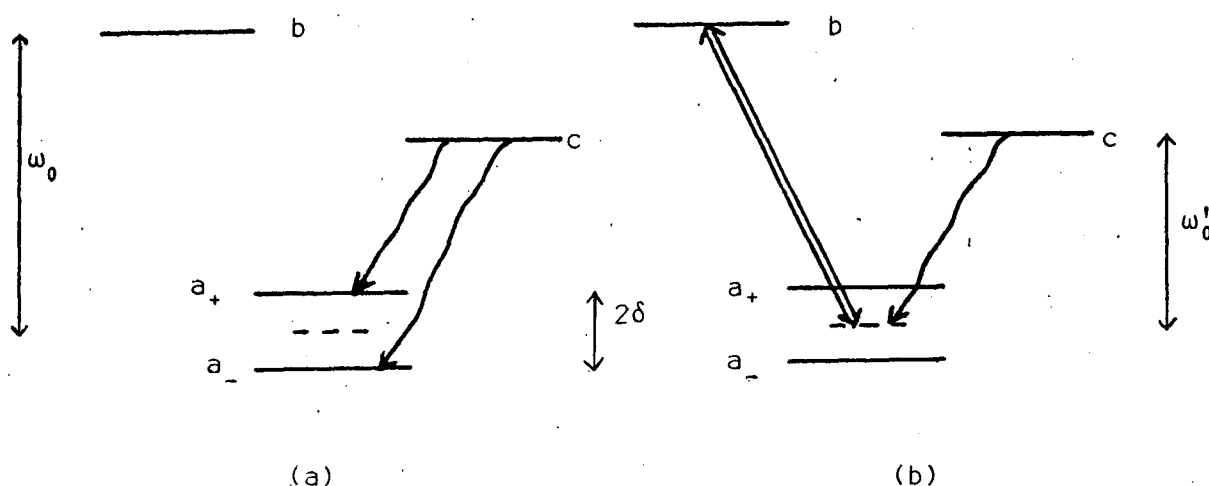


Fig III-3.5 : Interprétation perturbative des fréquences d'émission :

- (a) transitions spontanées de c vers a_+ et a_- ;
- (b) processus Raman inverse où l'atome part de c , émet un photon spontané puis absorbe un photon laser pour finir dans b .

Supposons comme précédemment le laser accordé sur ω_0 , fréquence atomique en champ nul de la transition ab . Pour un atome de vitesse v nulle, les déplacements du niveau b dus au couplage du laser avec les transitions ba_+ et ba_- sont exactement opposés et ils se compensent ; par contre, si la vitesse v n'est pas nulle, le niveau b subit un déplacement lumineux qui dépend linéairement de la vitesse (au premier ordre en v). Or la fréquence du photon émis dans le processus Raman inverse (Fig III-3.5b) dépend du déplacement lumineux du niveau b . On s'attend donc à ce que, pour une certaine valeur du champ magnétique, on observe une résonance de compensation à la fréquence ω'_0 . On aura alors compensation de l'effet Doppler grâce au déplacement lumineux (dépendant de la vitesse) affectant maintenant l'état final d'un processus Raman inverse.

Le schéma de niveau étudié ici présente une caractéristique intéressante (par comparaison avec le schéma précédemment) : on peut choisir à la détection une polarisation σ , soit parallèle, soit perpendiculaire à la

au schéma de niveaux de la Fig III-3.4. Ce diagramme de fréquence est représenté sur la Fig III-3.7 : on remarque en particulier qu'il possède deux asymptotes horizontales correspondant aux deux processus perturbatifs de la Fig III-3.5a et une asymptote de pente 1 correspondant au processus de la Fig III-3.5b.

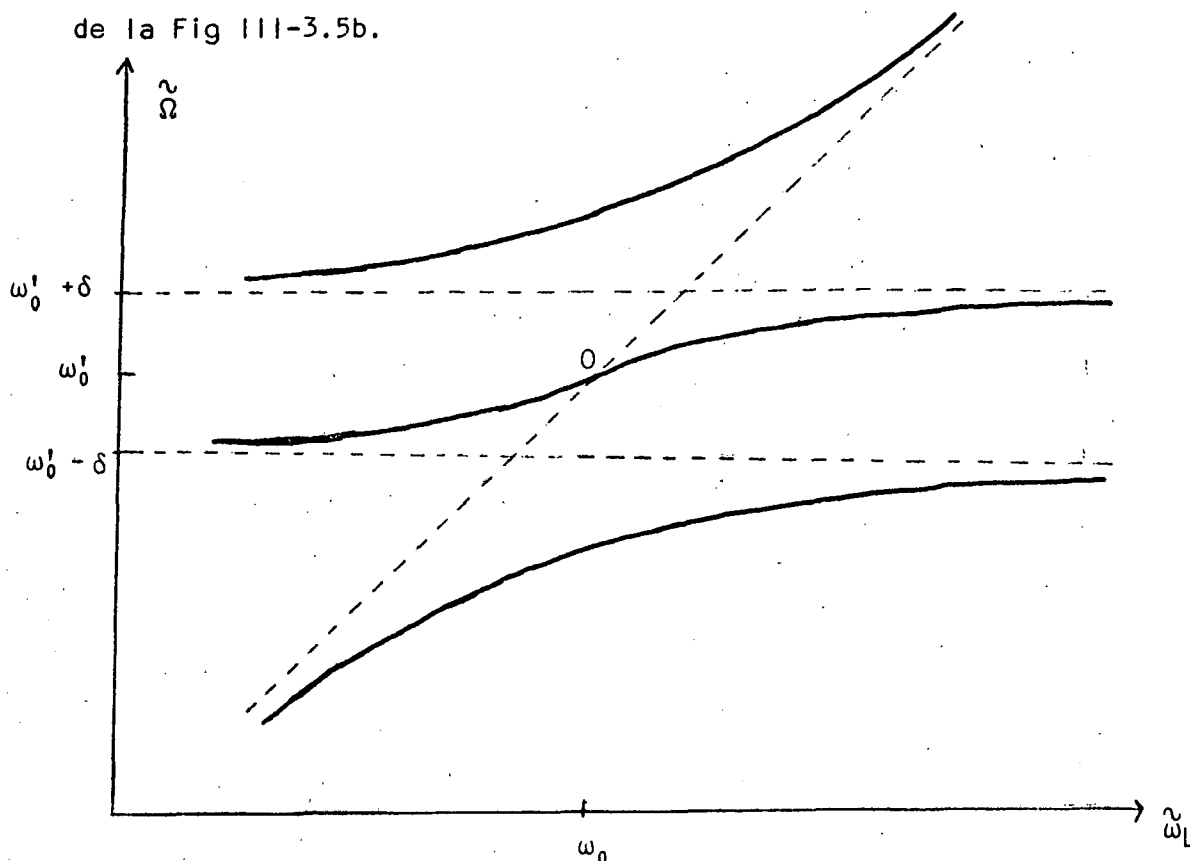


Fig III-3.7 : Le diagramme de fréquence

On peut calculer la pente p_0 au point 0 comme on l'a fait dans le § II-4.1. On trouve ici

$$p_0 = 2\delta^2 / (\omega_1^2 + 2\delta^2) \quad (\text{III-3.3})$$

Ceci nous permet de calculer la valeur du champ magnétique correspondant à la condition de compensation $p_0 = s$:

$$\delta = \omega_1 \sqrt{s / (2(1-s))} \quad (\text{III-3.4})$$

Les spectres expérimentaux que nous avons obtenus sont donnés dans les colonnes de gauche des Fig III-3.8 (polarisation $\sigma_{//}$) et III-3.9 ($\sigma_{\perp}$).

Les spectres théoriques correspondants sont donnés dans les colonnes de droite.

La réabsorption de la lumière de fluorescence est très importante sur la transition à $7245 \text{ \AA}$. Ceci nous a obligés à travailler à la pression minimum (0,25 Torr de néon dans une cellule reliée au banc de pompage). Le signal était alors plus faible que pour l'expérience précédente et la décharge beaucoup moins stable ; de plus, on détecte non seulement la fluorescence de c ($2p_{10}$, $m=0$) vers a_+ et a_- ($1s_4$, $m = \pm 1$) mais aussi celle des sous niveaux $m = \pm 1$ de $2p_{10}$ vers le sous niveau $m=0$ de $1s_4$ (qui donne bien sur naissance à un fond sans structure puisque ce sous niveau $m=0$ de $1s_4$ n'est pas couplé au laser). Tout ceci explique que le rapport signal sur bruit soit moins bon que sur la Fig. III-3.1.

En champ nul ($B=0$ G), on observe un doublet Autler Townes en polarisation $\sigma_{\perp}$ (Fig III-3.9) mais aucune structure n'apparaît en $\sigma_{\parallel}$ (Fig III-3.8). Ce résultat a une interprétation très simple : en champ nul, a_+ et a_- sont dégénérés et leur combinaison antisymétrique a_A , non couplée au laser, n'intervient pas dans le problème. On est ramené à un problème où deux sous niveaux seulement, et non plus trois, sont couplés au laser. Si l'on détecte la fluorescence $\sigma_{\perp}$ émise sur la transition ca_S , on observe donc simplement le doublet Autler Townes ; si l'on détecte par contre la fluorescence $\sigma_{\parallel}$ émise sur la transition ca_A , aucune structure n'apparaît puisque a_A n'est pas perturbé par la présence du laser.

Quand B augmente, on observe en $\sigma_{\parallel}$ la croissance progressive d'un pic fin centré en ω_0' ; il atteint son maximum pour le champ $B = 114 \text{ G}$ qui correspond à la condition de compensation (III-3.4). La largeur de ce pic est de l'ordre de 36MHz. Elle est plus faible que sur l'autre transition simplement parce que la pression de Néon est plus faible (moins d'élargissement collisionnel). Le pic de compensation n'apparaît pratiquement pas en polarisation $\sigma_{\perp}$; ceci signifie que l'émission de photons de fréquence ω_0' par le processus Raman inverse (Fig III-3.5b) correspond à une transition de c vers la combinaison antisymétrique a_A de a_+ et a_- . On remarque aussi que les raies latérales qui accompagnent le pic de compensation ont un poids plus important en $\sigma_{\perp}$ qu'en $\sigma_{\parallel}$; le pic de compensation apparaît ainsi avec un contraste

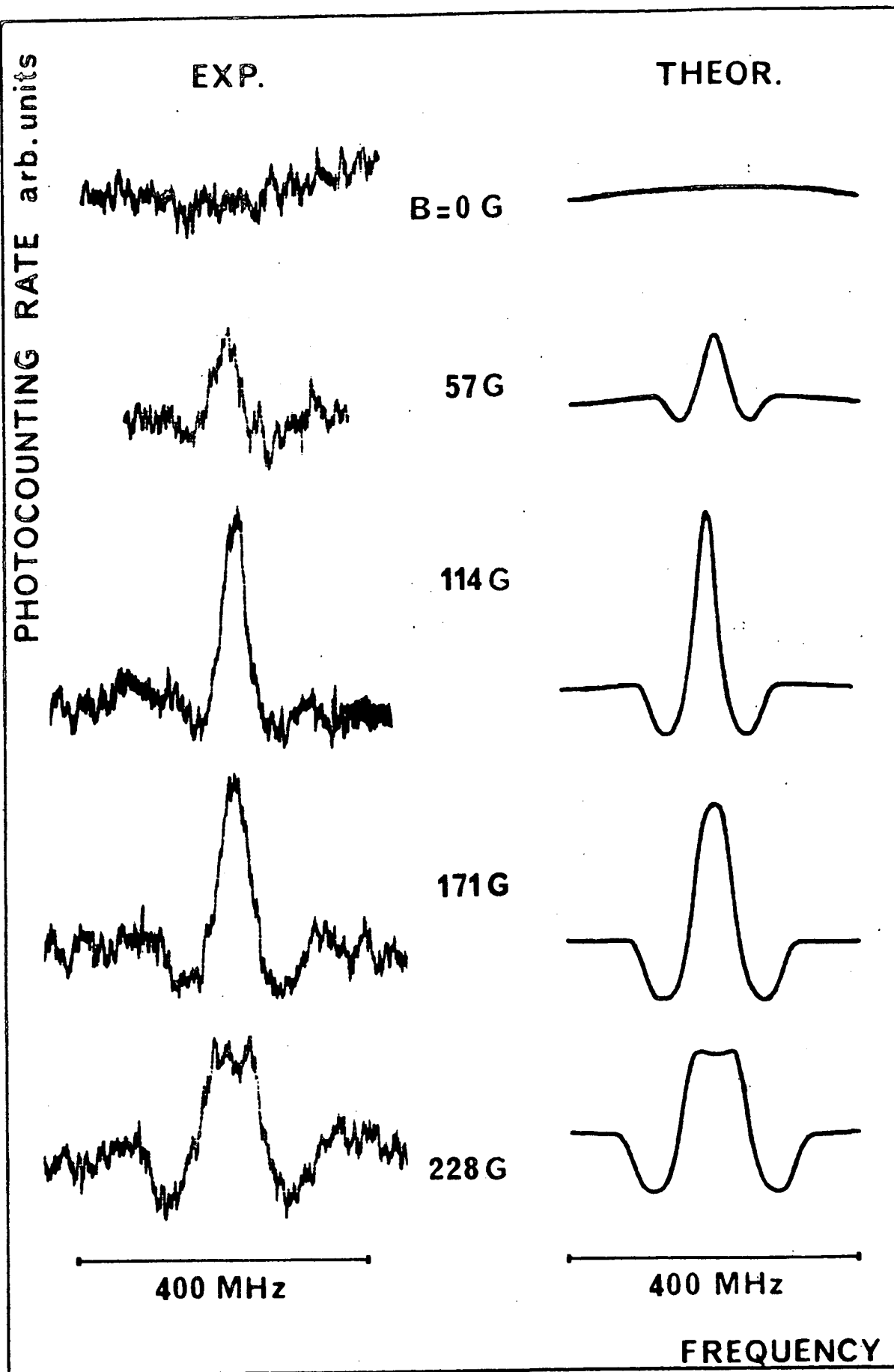


Fig III-3.8 : Réseaux expérimental et théorique 6074 Å / 7245 Å ($\sigma_{//}$)

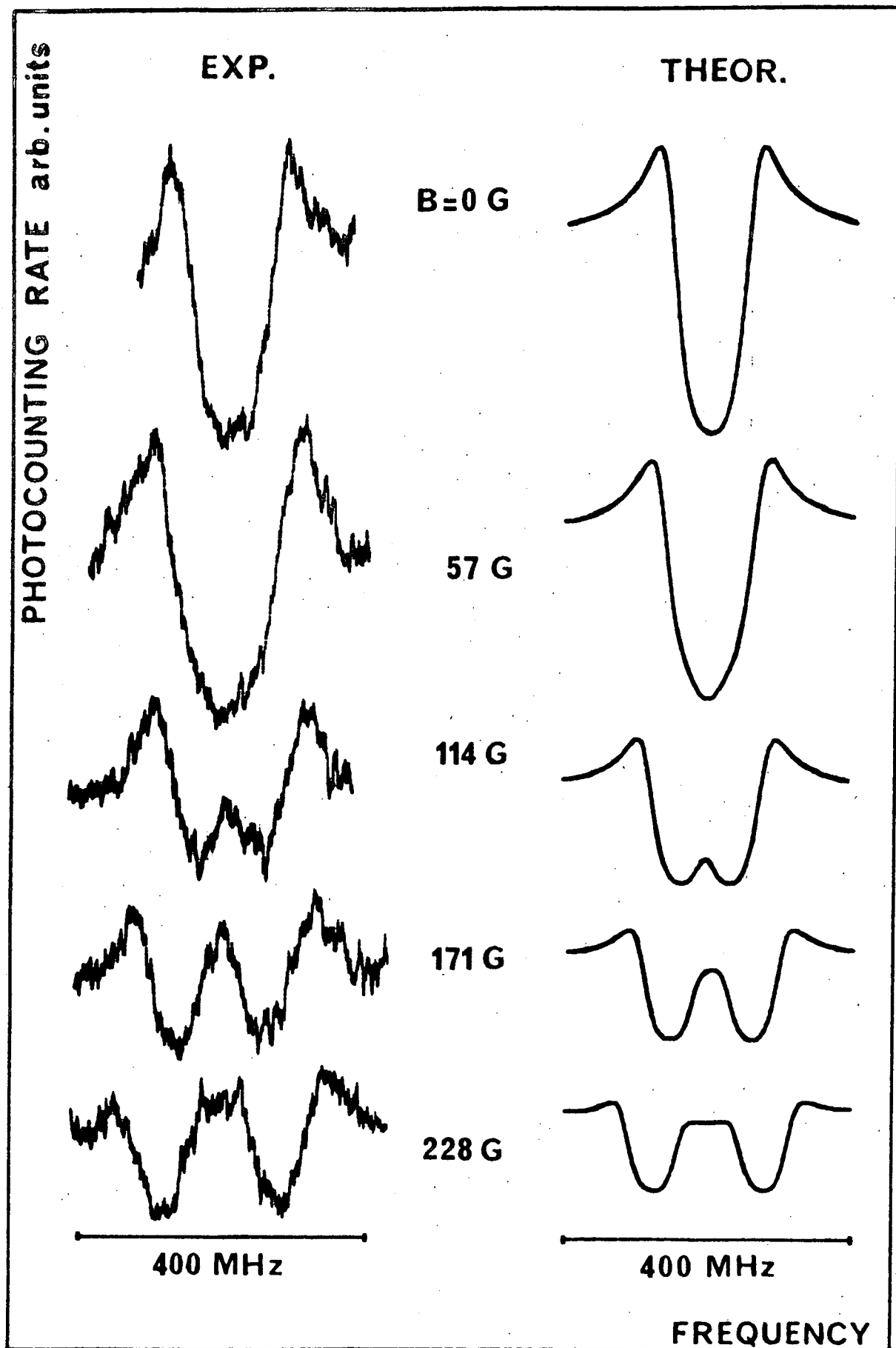


Fig III-3.9 : Réseaux expérimental et théorique $6074 \text{ \AA} / 7245 \text{ \AA}$ ($\sigma_{\perp}$)

meilleur que sur la Fig III-3.1.

En conclusion, on peut constater que les effets de polarisation ont une grande importance pour le schéma de niveaux étudié ici et qu'ils ont des conséquences très intéressantes : le pic de compensation apparaît en polarisation $\sigma_{//}$ alors qu'aucune structure n'existe en champ nul sur cette polarisation et il apparaît avec un très bon contraste.

III-3.3 Expériences en absorption

Les schémas de niveaux correspondant aux expériences en absorption sont représentés sur la Fig III-1.3 (page 182).

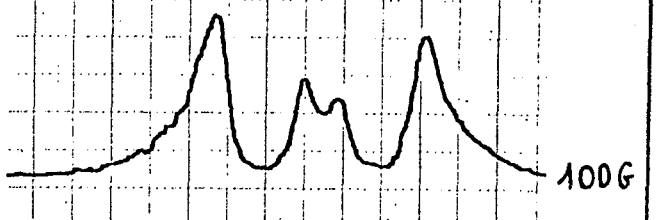
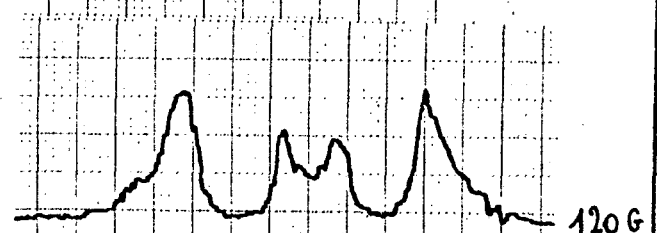
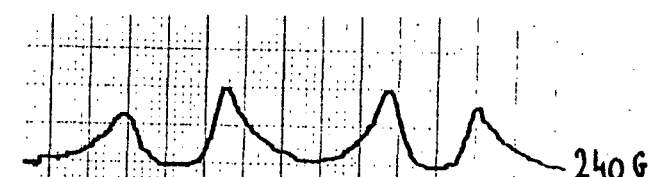
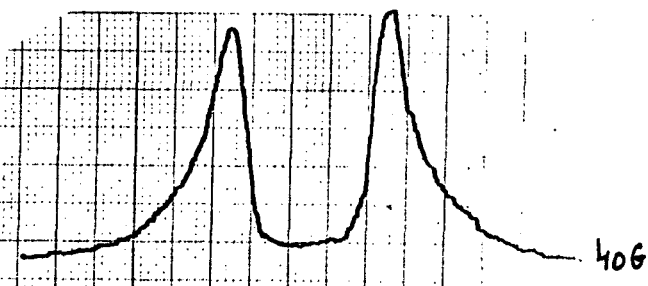
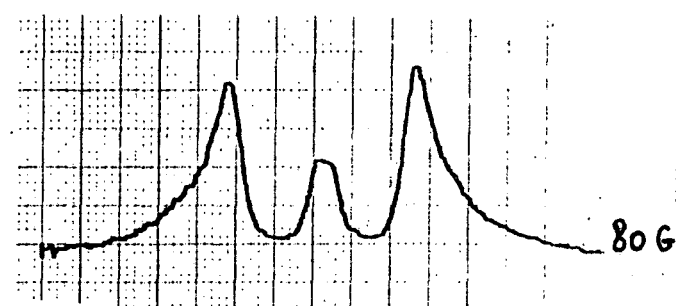
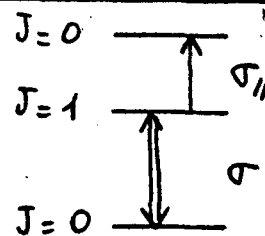
Les spectres expérimentaux correspondant à la saturation de la transition $6163 \text{ \AA}$ et à la détection à $1,198 \mu$ sont donnés sur les Fig III-3.10 (polarisation $\sigma_{//}$) et III-3.11 ($\sigma_{\perp}$). Rappelons que l'on balaie la fréquence du laser pompe et non celle du laser sonde (plage de balayage trop limitée). Les spectres ont la même allure que si on balayait la fréquence sonde mais l'échelle en abscisse est augmentée dans un rapport :

$$\frac{\lambda_0'}{\lambda_0} = \frac{1,198 \mu}{6163 \text{ \AA}} \approx 2 \quad (\text{III-3.5})$$

En champ magnétique nul, le doublet Autler Townes apparaît sur la polarisation $\sigma_{//}$ (ce qui est en accord avec la discussion de § III-3.2 puisque la transition sondée est une transition 0-1). Aucune structure n'apparaît en champ nul sur la polarisation $\sigma_{\perp}$ mais, pour des valeurs croissantes du champ, on observe la montée d'un pic à la fréquence centrale ; lorsque la valeur optimale (ici $B=80 \text{ G}$) est dépassée, le pic s'élargit puis se dédouble.

Ces spectres sont très voisins des spectres observés en fluorescence (Fig III-3.8 et III-3.9). Ce fait a une interprétation très claire : les effets dus aux déplacements des niveaux d'énergie de l'atome (effets contenus dans le diagramme de fréquence et discutés dans la deuxième partie de la thèse) sont exactement les mêmes pour une détection en fluorescence ou en absorption. Les seules différences entre les spectres d'absorption ou de fluorescence proviennent des effets de population (absents en fluorescence, présents en absorption) et se manifestent essentiellement dans les ailes du spectre. On peut

ABSORPTION DU LASER SONDE



2 GHz

FREQUENCE DU LASER POMPE

Figure III-3.10 : Réseau expérimental en absorption correspondant au schéma 6165 Å/1,198μ (détection $\sigma_{//}$). Le schéma des niveaux et les polarisations sont rappelés en médaillon.

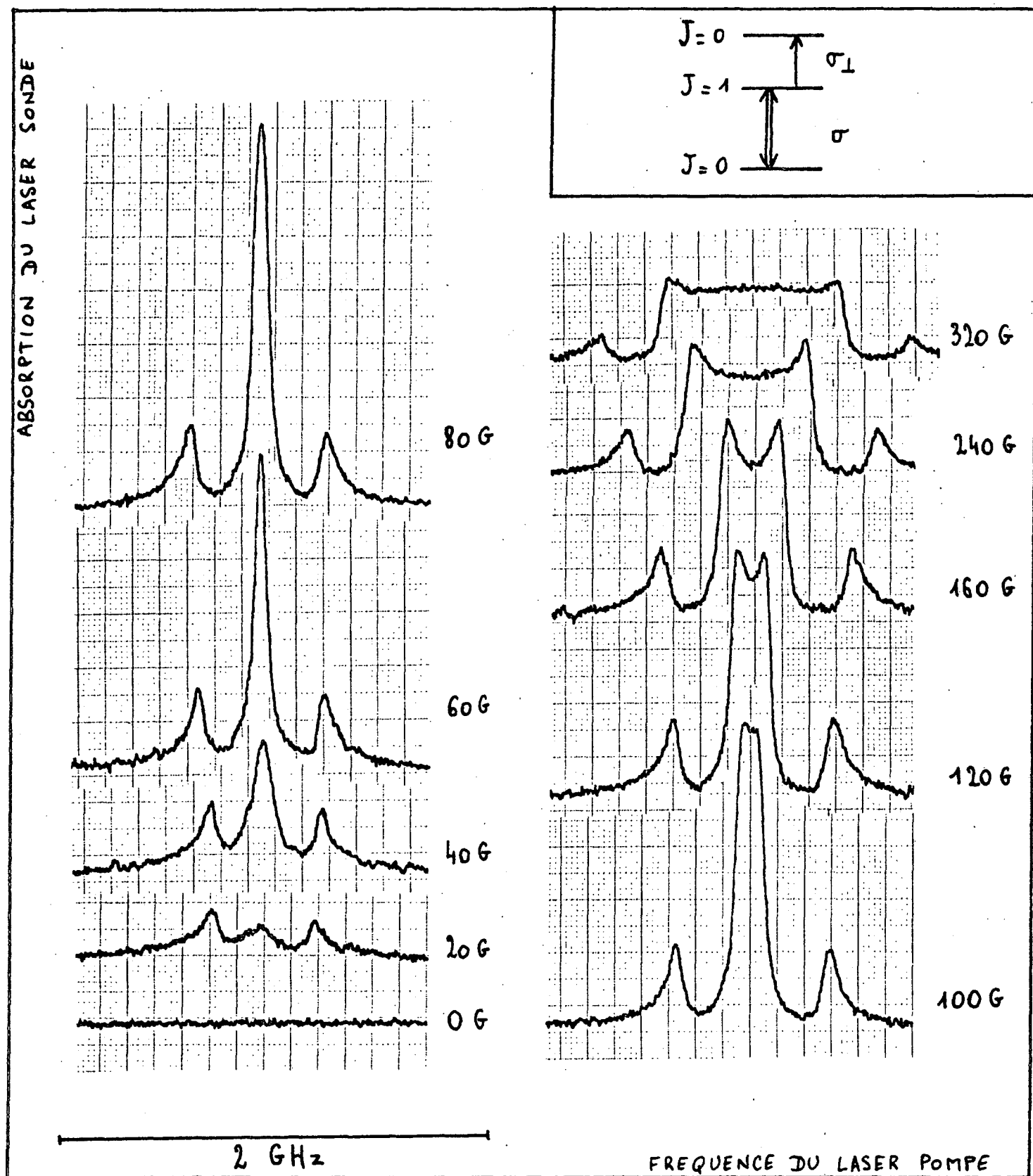


Figure III-3.11 : Réseau en absorption $6163 \text{ \AA} / 1,198 \mu$ ($\sigma_{\perp}$)

les interpréter de la manière suivante : en l'absence de laser pompe, la population du niveau $1s_3$ est beaucoup plus grande que celle des niveaux $2p_2$ et $2s_3$ (voir Fig III-1.3); en présence du laser pompe, l'absorption du laser sonde est donc essentiellement proportionnelle à la population ramenée du $1s_3$ dans le $2p_2$ par le laser et le spectre d'absorption a donc une largeur en fréquence de l'ordre de ω_1 . Par contre les signaux de fluorescence des Fig III-3.8 et III-3.9 sont proportionnels à une population non couplée au laser et les spectres ont donc une largeur en fréquence de l'ordre de Δ .

Bien que le faisceau sonde soit focalisé au mieux ($w_s = 90 \mu$ pour une décharge de 4cm), le waist du faisceau pompe ($w_p = 330 \mu$) n'est pas beaucoup plus petit qu'en fluorescence (où il valait 400μ) ; en effet, avec un waist plus petit, la dispersion des valeurs de ω_1 devient trop importante (les spectres ont alors une "forme triangulaire" comme les spectres de fluorescence de la Fig III-3.3). Nous obtenons dans ces conditions une fréquence de Rabi ω_1 de l'ordre de 250 MHz et une dispersion relative (voir l'équation III-2.10).

$$\Delta\omega_1 / \omega_1 = w_s^2 / w_p^2 = 8\% \quad (\text{III-3.6})$$

La détection en absorption ne nous a donc pas permis d'augmenter sensiblement ω_1 ; elle nous a par contre permis de diminuer la largeur homogène ; on remplace en effet la largeur d'analyse du Fabry Péro (~ 15 MHz) par la largeur spectrale du laser HeNe (~ 1 MHz) et on peut de plus diminuer la largeur collisionnelle en travaillant à basse pression (0,35 Torr pour les enregistrements des Fig III-3.10 et III-3.11). Pour mesurer la largeur de la résonance de compensation, on peut garder fixe la fréquence du laser pompe et balayer le laser HeNe (plage de balayage de 150 MHz). La figure III-3.12 donne les spectres en polarisation σ_1 en champ nul (aucune structure) et pour la valeur optimale du champ magnétique. La largeur à mi hauteur de la résonance de compensation est sur cette courbe de 20 MHz.

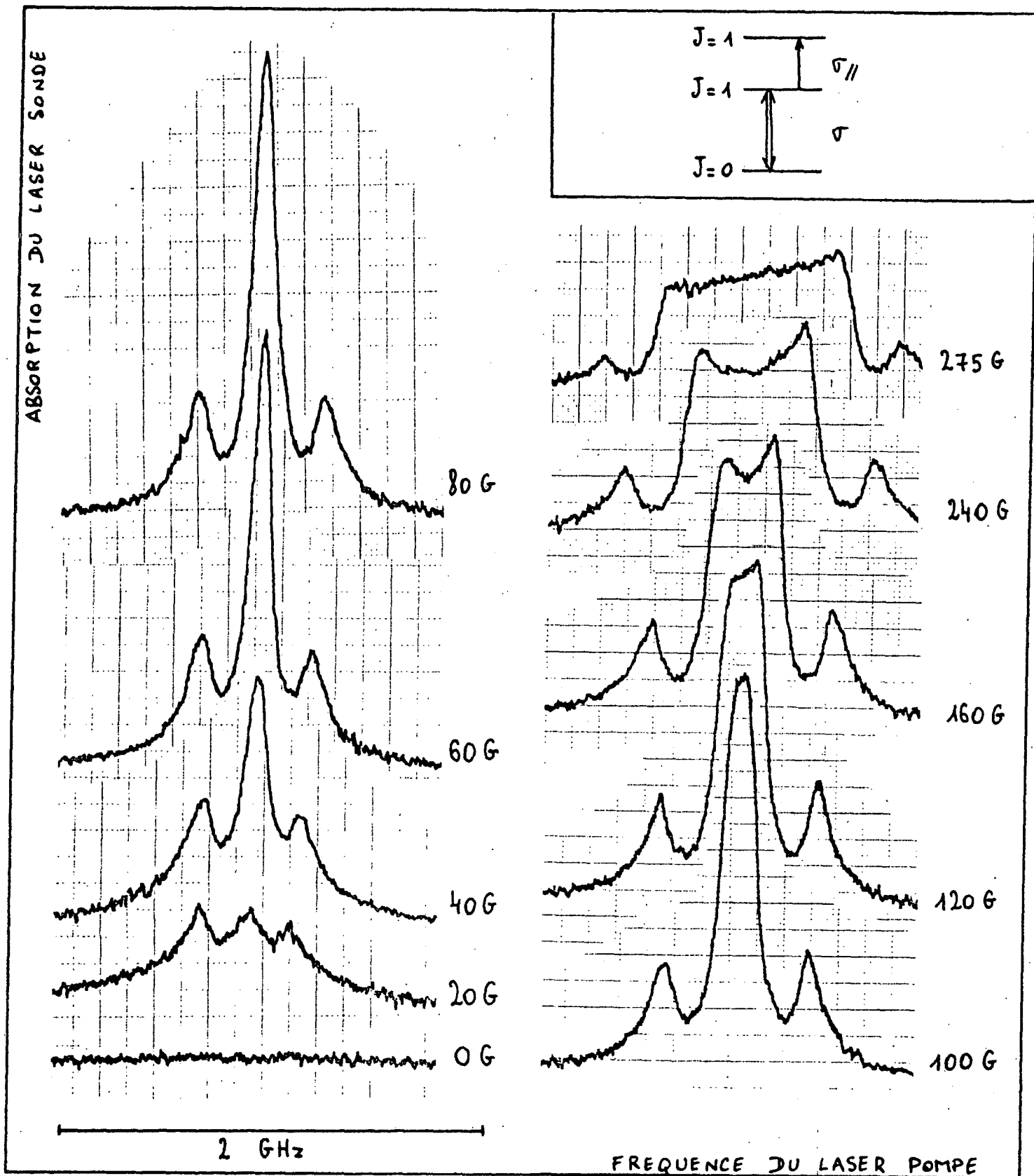


Figure III-3.13 : Réseau en absorption $6163\text{\AA}/1,177\text{ }\mu$ ($\sigma_{//}$)

ABSORPTION DU LASER SONDE

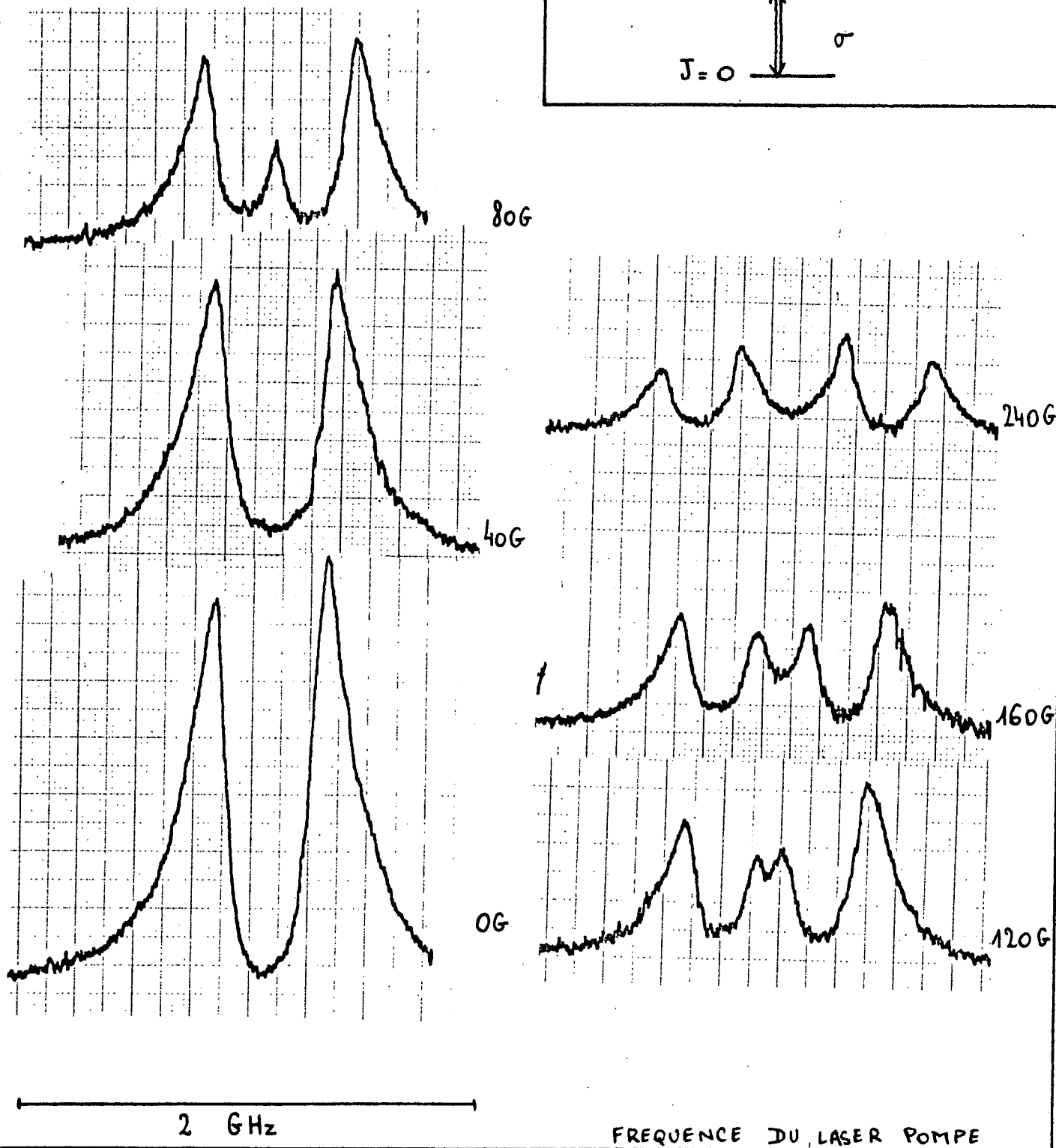
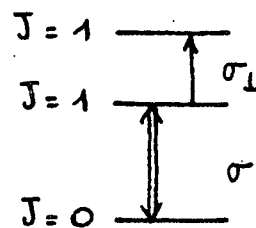
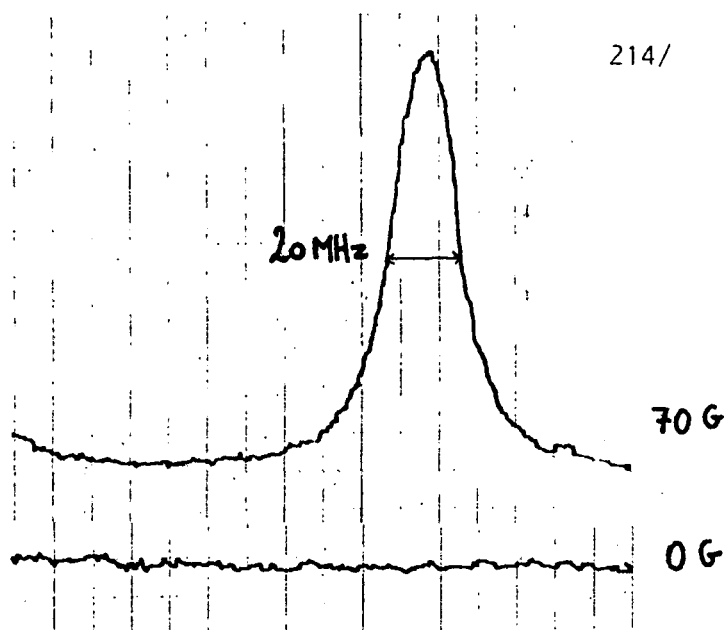


Fig III-5.14 : Réseau en absorption 6163 Å / 1,177 μ (σ_L)

Fig III-3.12

Spectre d'absorption en polarisation $\sigma_{\perp}$ obtenu en balayant la fréquence sonde à fréquence pompe constante (intervalle total de balayage 150 MHz).



Les spectres expérimentaux correspondant à la saturation de la transition $6163 \text{ \AA}$ et à la détection à $1,177 \mu$ sont donnés sur les Fig III-3.13 ($\sigma_{//}$) et III-3.14 ($\sigma_{\perp}$). Ils sont pratiquement identiques à ceux correspondant à la détection à $1,198 \mu$ à condition d'échanger les rôles de $\sigma_{//}$ et $\sigma_{\perp}$; en effet, la détection se fait ici sur une transition 1-1 (voir le § III-3.2).

III-3.4 Schémas de niveaux où plus de trois sous niveaux sont couplés au laser

Nous avons regroupé dans ce paragraphe les résultats de deux expériences, l'une en fluorescence (schéma $6096 \text{ \AA} / 7245 \text{ \AA}$ de la Fig III-1.2); l'autre en absorption (schéma $6096 \text{ \AA} / 1,152 \mu$ de la Fig III-1.3) qui correspondent à une situation où le laser, accordé à $6096 \text{ \AA}$ et de polarisation σ saturé la transition entre $1s_4$ ($J=1$) et $2p_4$ ($J=2$). Alors que trois sous niveaux seulement étaient couplés au laser dans toutes les expériences décrites jusqu'à maintenant, il y en a huit ici (Fig III-3.15)

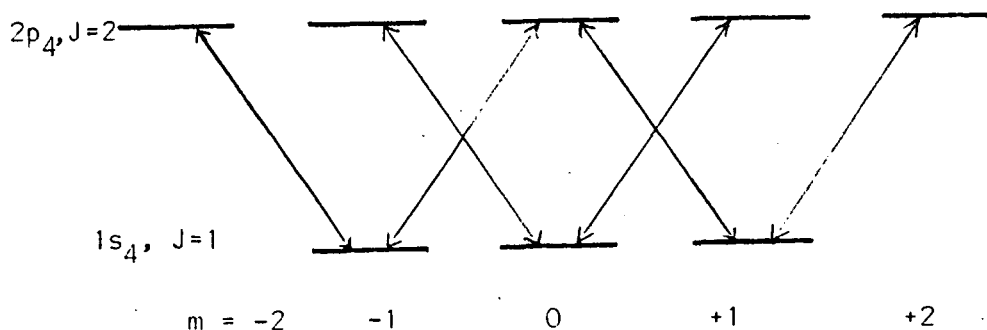


Fig III-3.15 : Les huit sous niveaux Zeeman du $2p_4$ et du $1s_4$ et les couplages entre eux.

Bien que la situation soit plus compliquée que précédemment, on peut, par la même méthode graphique, faire une étude quantitative et non perturbative du problème. Le diagramme de fréquence est construit dans la thèse de 3ème cycle de Marc Himbert. Nous voulons juste montrer ici que l'on peut comprendre l'allure des spectres et qu'il existe encore des résonances de compensation.

Nous donnons les résultats expérimentaux obtenus en fluorescence (détection de la fluorescence à 7245 Å) sur les Fig III-3.16 (polarisation de détection $\sigma_{//}$) et III-3.18 ($\sigma_{\perp}$). Les spectres théoriques correspondant sont représentés sur les Fig III-3.17 et III-3.19. On constate un bon accord entre les spectres expérimentaux et théoriques. On voit en particulier que, malgré la complexité des structures, on comprend bien le nombre et la position des résonances.

Nous avons vérifié, en calculant les spectres théoriques correspondants, que ces résonances apparaîtraient beaucoup plus nettement si la fréquence de Rabi ω_1 était plus grande ou la largeur homogène γ plus petite.

C'est d'ailleurs ce que démontrent les résultats expérimentaux obtenus en absorption (à 1,152 μ) et représentés sur les Fig III-3.20 (polarisation $\sigma_{//}$) et III-3.21 ($\sigma_{\perp}$). En effet, comme nous l'avons souligné dans le § III-3.3, nous pouvons obtenir, dans les expériences d'absorption, une fréquence de Rabi légèrement plus grande et une largeur homogène beaucoup plus petite que dans les expériences de fluorescence et les résonances de compensation apparaissent effectivement très clairement sur les spectres en absorption des Fig III-3.20 et Fig III-3.21.

Notons que les spectres sont différents sur les deux polarisations mais de façon moins spectaculaire que dans les paragraphes précédents; en particulier, les doublets Autler Townes en champ nul apparaissent pour les deux polarisations.

La conclusion de ce paragraphe est que l'effet de compensation n'est pas limité aux situations où trois sous niveaux seulement sont couplés au laser (saturation d'une transition 0-1 par un laser de polarisation σ). Nous avons démontré (expérimentalement et théoriquement) que cet effet existe aussi lorsque les moments cinétiques sont plus élevés, les spectres obtenus ayant toutefois une structure plus compliquée.

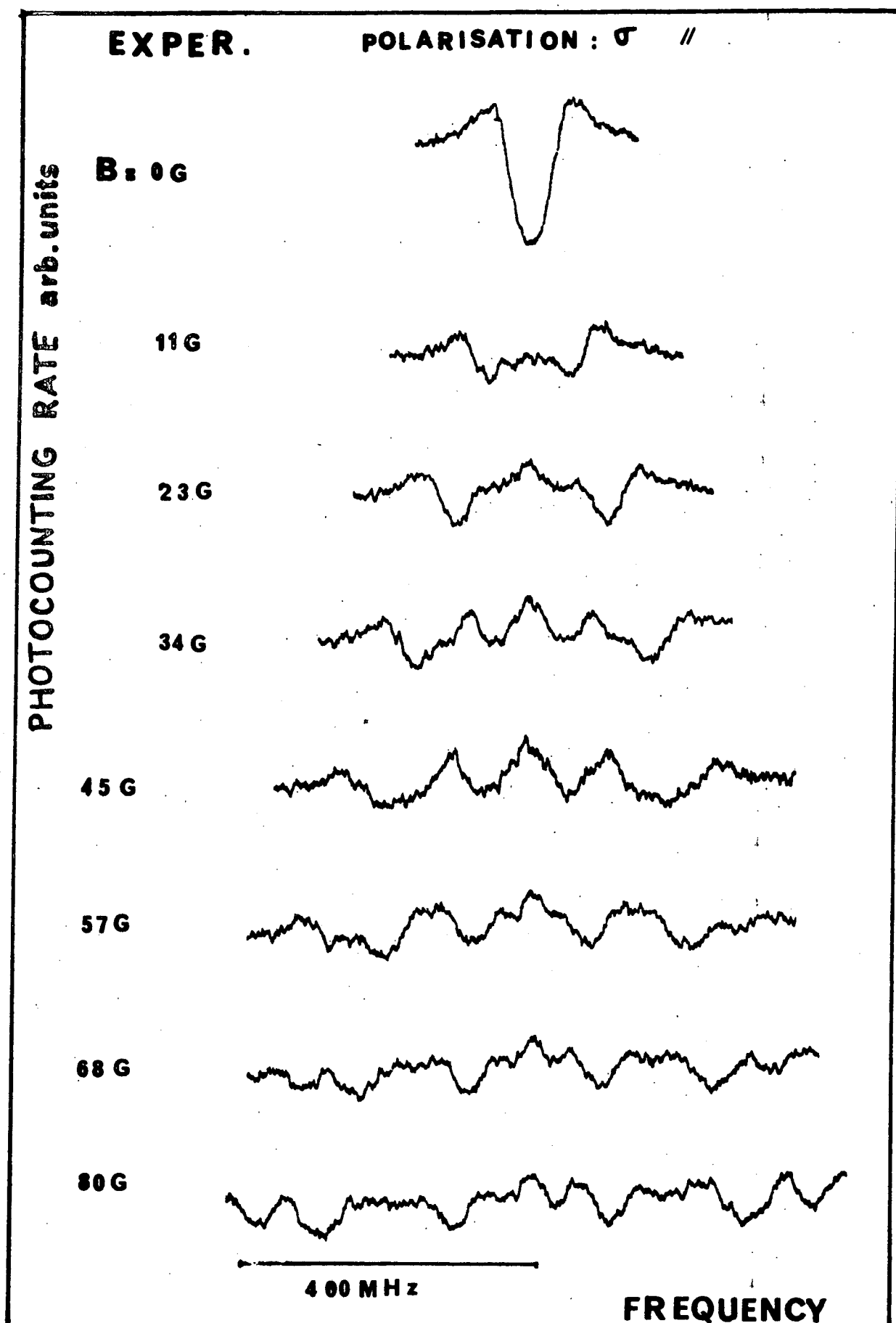


Fig III-3.16 : Réseau expérimental 6096 Å / 7245 Å (fluorescence $\sigma_{//}$)

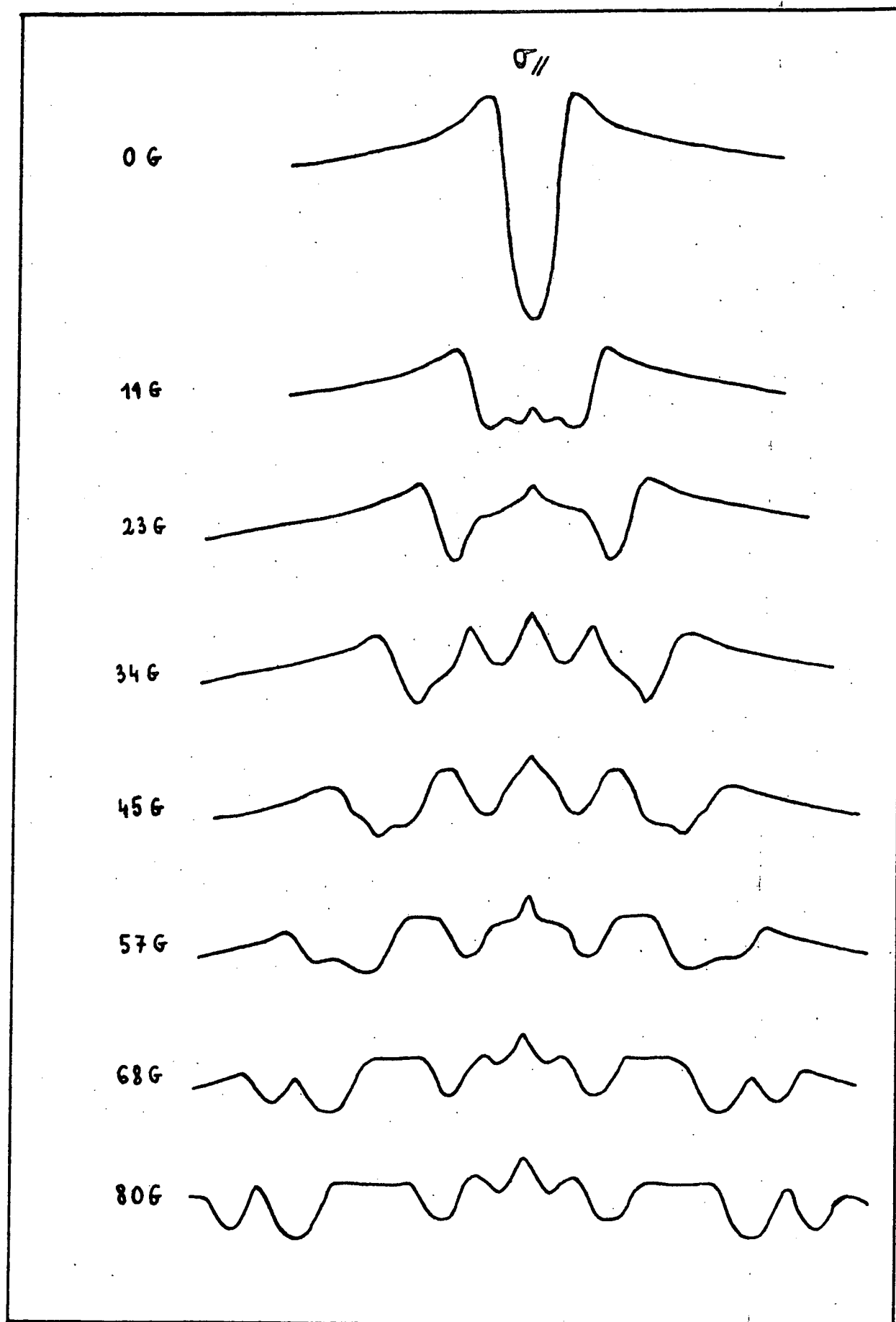


Fig III-3.17 : Réseau théorique 6096 Å / 7245 Å (fluorescence $\sigma_{//}$)

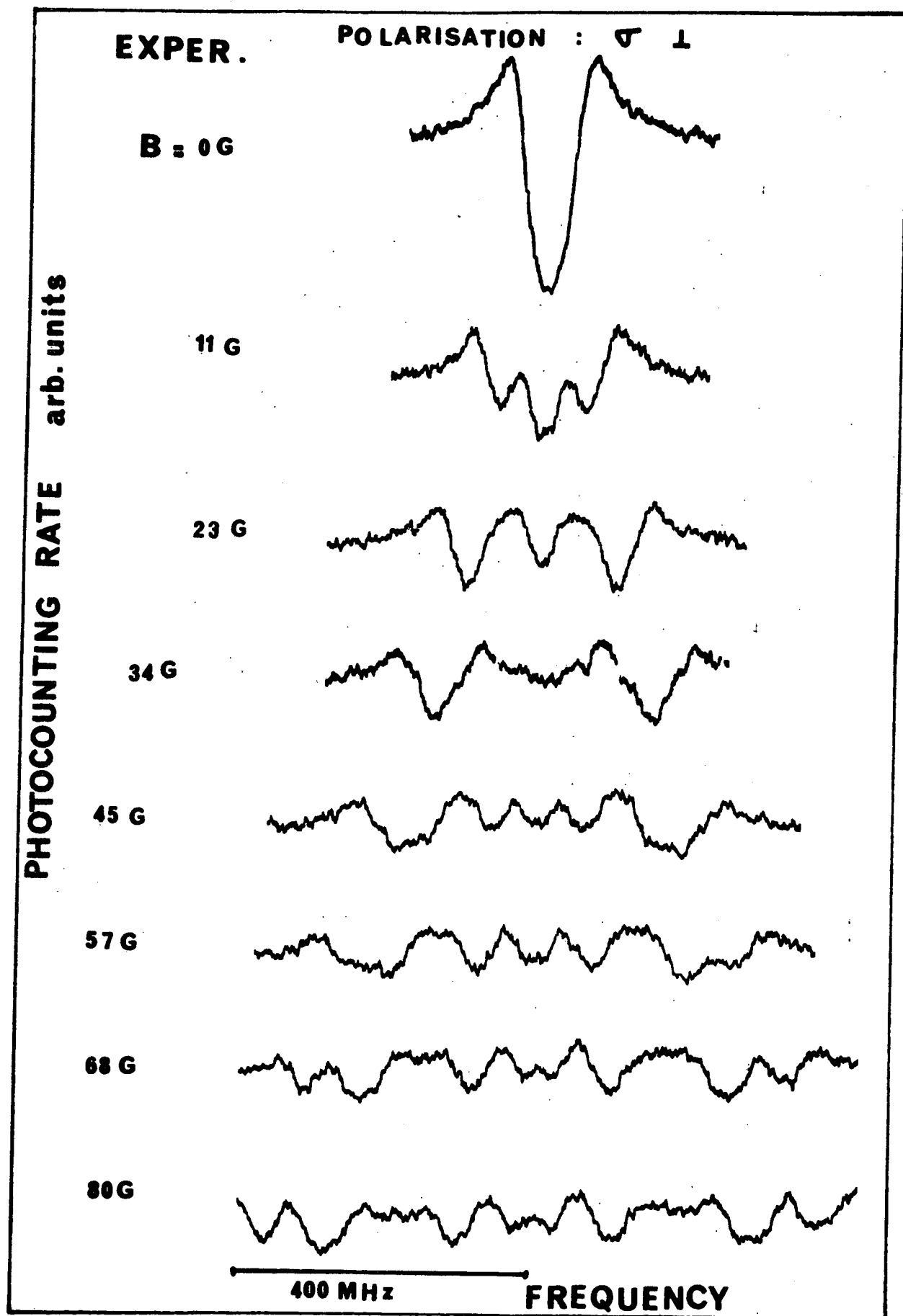


Fig III-3.18 : Réseau expérimental $6096 \text{ \AA} / 7245 \text{ \AA}$ (fluorescence $\sigma_{\perp}$)

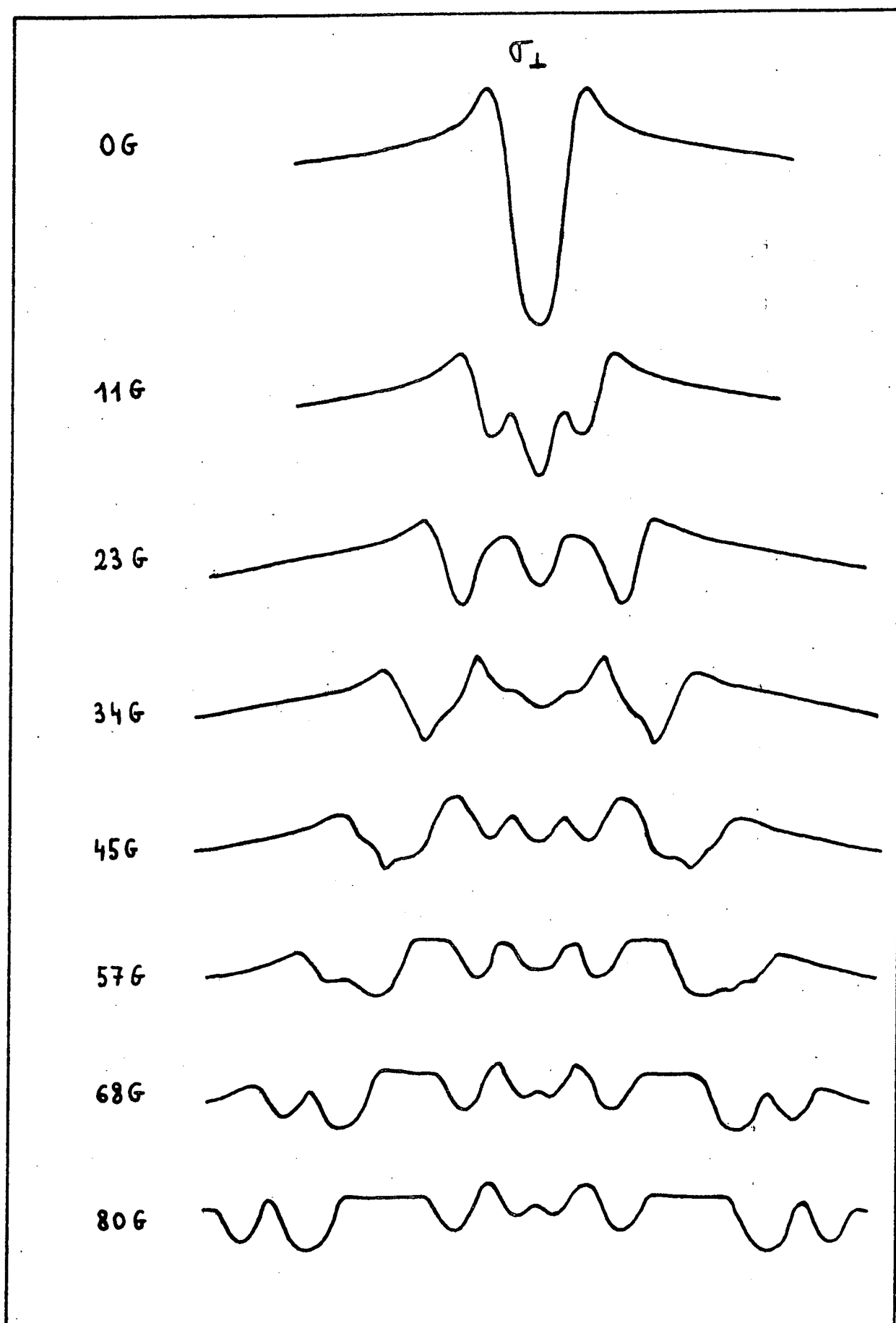
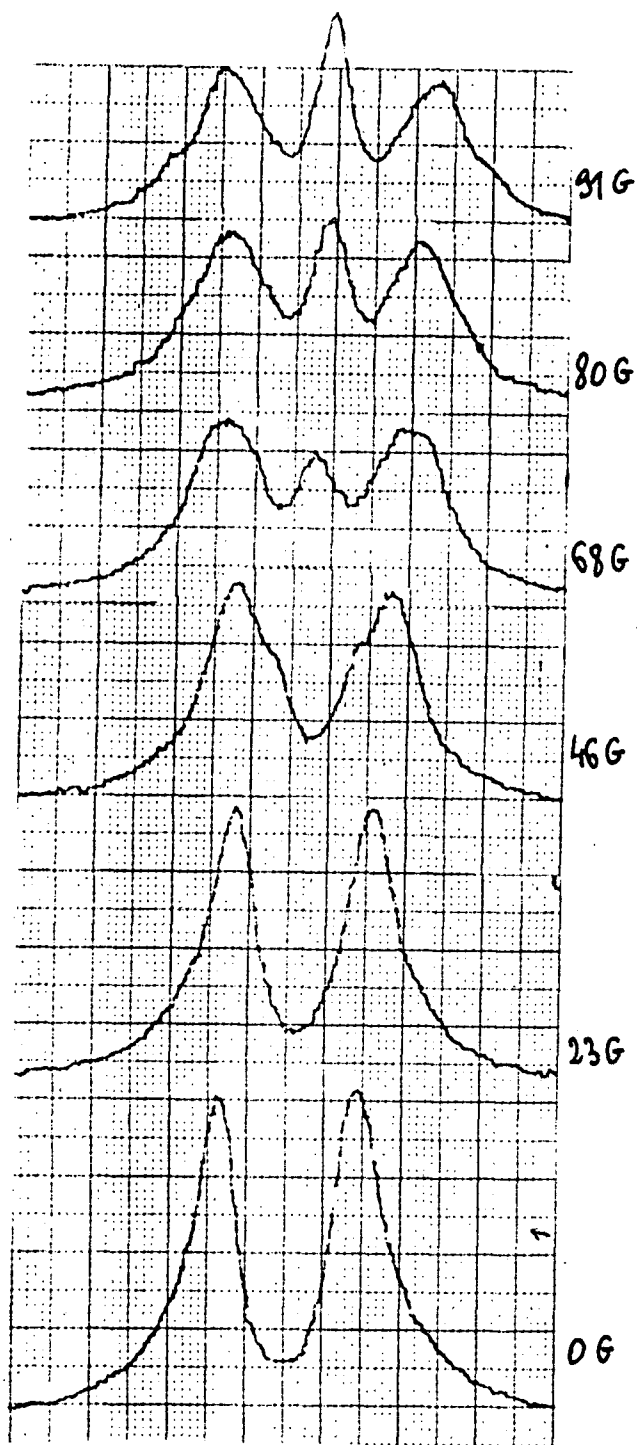
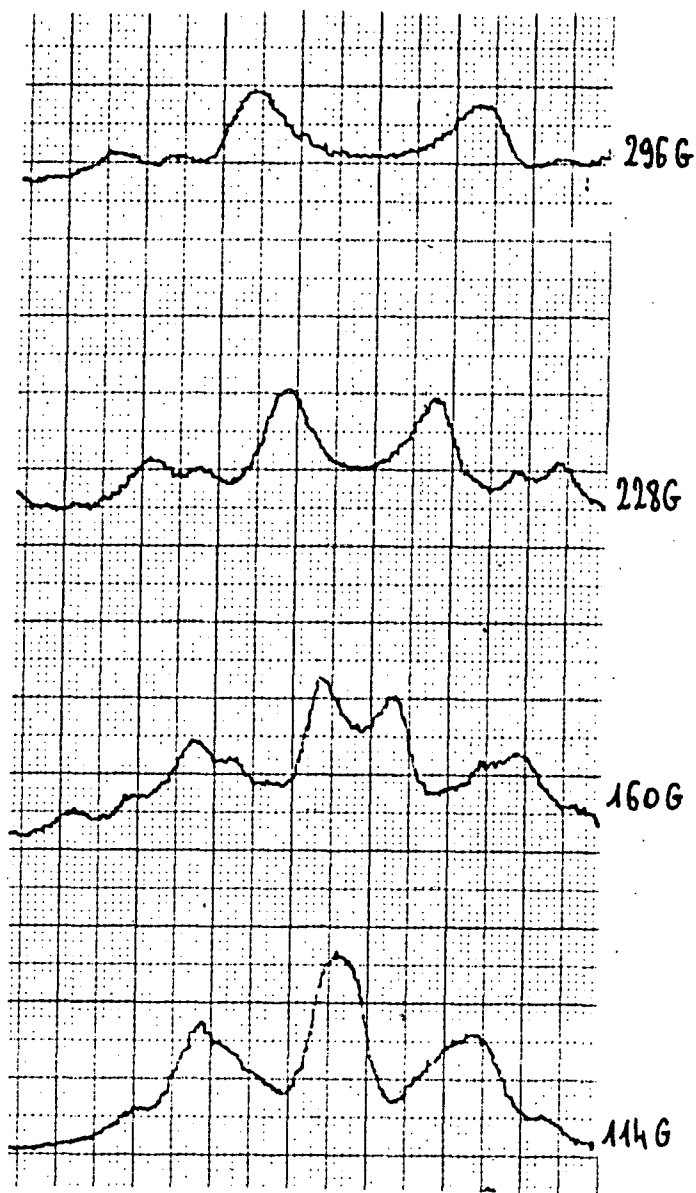
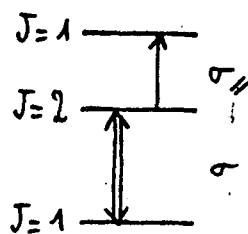


Fig III-3.19 : Réseau théorique 6096 Å / 7245 Å (fluorescence $\sigma_{\perp}$)

ABSORPTION DU LASER SONDE



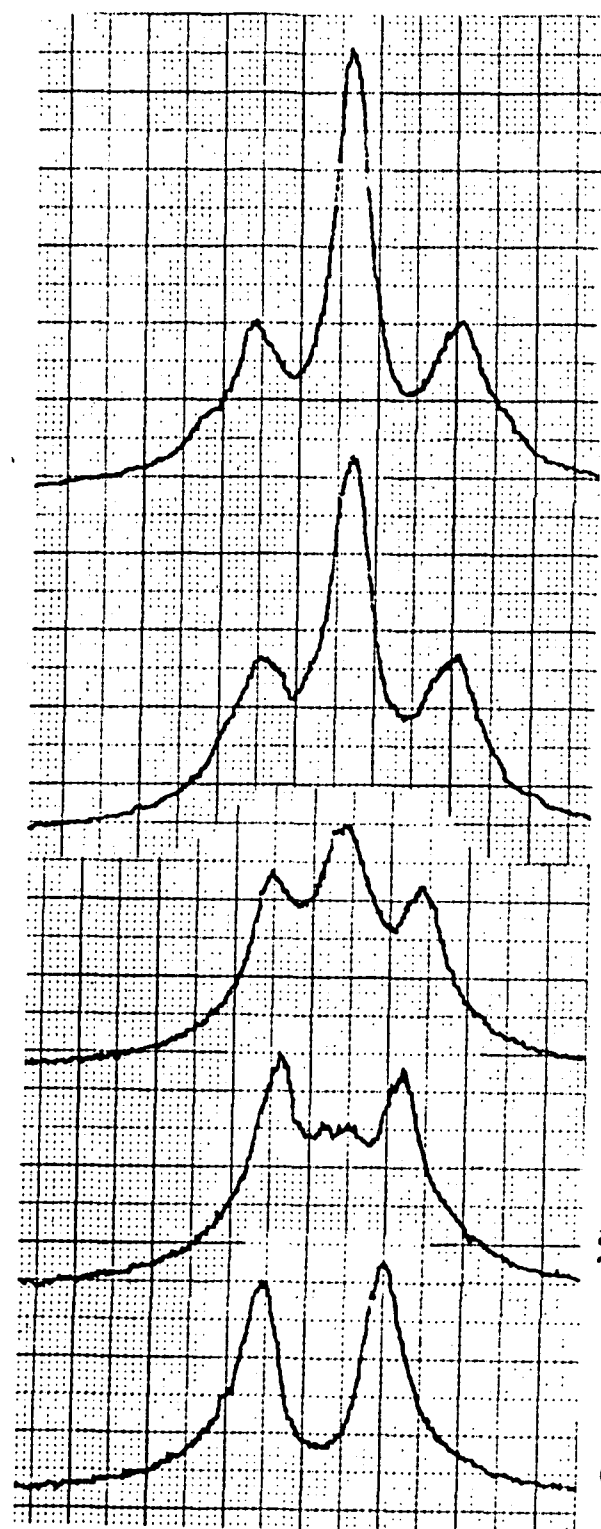
2 GHz



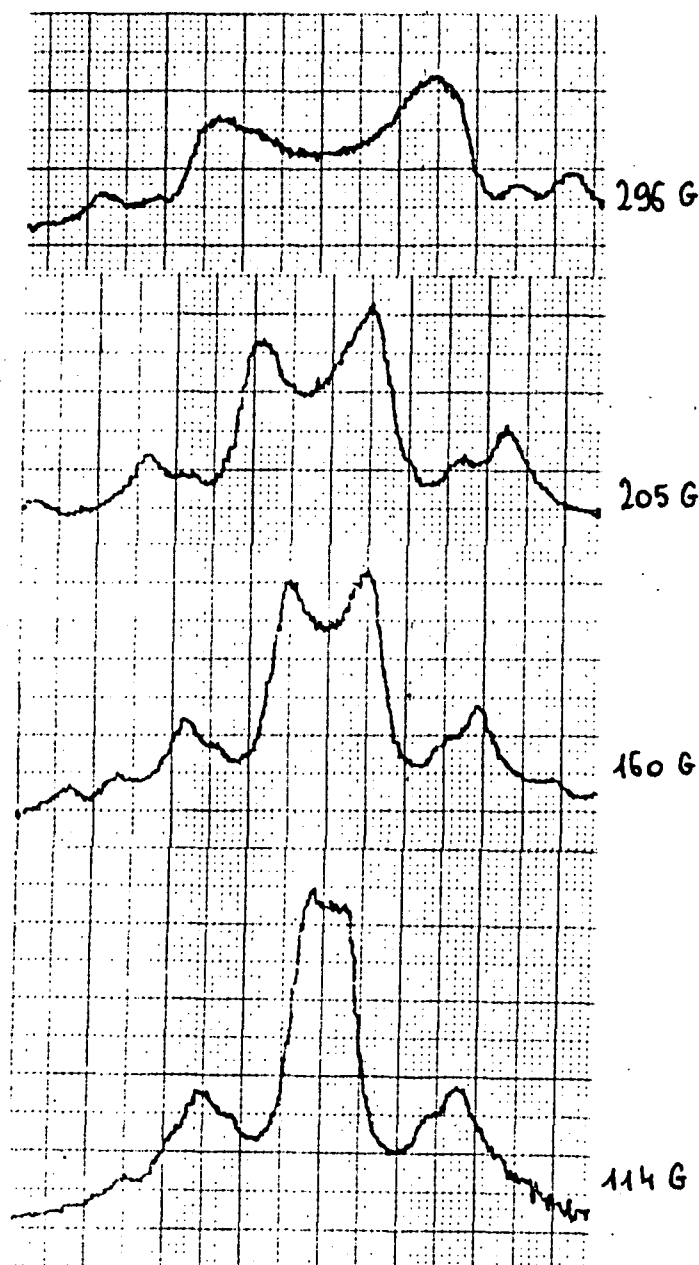
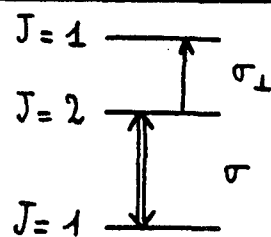
FREQUENCE DU LASER POMPE

Fig III-3.20 Réseau en absorption $6096 \text{ \AA} / 1,152 \text{ y} (\sigma_{||})$

ABSORPTION DU LASER SONDE



2 GHz



FREQUENCE DU LASER POMPE

Fig III-3.21 : Réseau en absorption $6096 \text{ \AA} / 1,152 \mu$ (σ_1)

C H A P I T R E III-4

CONCLUSION

Les spectres que nous avons présentés dans le chapitre précédent mettent en évidence sans ambiguïté le phénomène de compensation de l'effet Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse. Ceci est particulièrement frappant pour les expériences en fluorescence puisqu'il n'y a dans ce cas aucun effet de population ; les structures étroites observées proviennent uniquement des déplacements lumineux du niveau final de la transition. Mais le phénomène de compensation se manifeste aussi sur les spectres d'absorption, conduisant à des structures très voisines de celles observées en fluorescence. Les résultats obtenus sont en parfait accord avec les prévisions théoriques (présentées dans le § II-4).

Dans toutes ces expériences, la compensation de l'effet Doppler n'a concerné qu'une fraction des atomes de la cellule (compensation partielle). En effet, la puissance laser utilisée n'a jamais dépassé 250 mW (à la sortie du laser); nous nous sommes limités à des focalisations du faisceau pompe telles que la dispersion $\Delta\omega_1$ de ω_1 ait un effet faible sur les spectres ; nous avons ainsi obtenu des fréquences de Rabi de l'ordre de 200 à 250 MHz bien inférieures à la largeur Doppler.

On pourrait donc obtenir une compensation plus importante si l'on disposait d'une puissance laser plus grande. En effet, si l'on appelle A l'augmentation du signal due à l'effet de compensation

$$A \sim (\omega_1 / \gamma)^{2/3} \quad (III-4.1)$$

(relation II-4.31 page 173) . Or

$$\omega_1 \sim \sqrt{P} / w_p \quad (III-4.2)$$

(P est la puissance de pompe et w_p le "waist" de pompe). On pourrait donc penser que quand on augmente la puissance, A augmente comme $P^{1/3}$. En fait, si on augmente P sans modifier w_p , la dispersion $\Delta\omega_1$ augmente ce qui peut amener une diminution du signal. On montre dans l'appendice A3 que pour toute valeur de P , il existe une valeur optimale de w_p qui varie comme $P^{1/8}$ en fonction de P . La

valeur optimale de ω_1 varie donc comme $P^{3/8}$ (d'après III-4.2) et celle de A comme $P^{1/4}$ (d'après III-4.1). On obtient aussi (appendice A3) la dépendance de A_{opt} vis à vis de γ et de "waist" du faisceau sonde, autrement dit de la longueur ℓ de la décharge (d'après III-2.10).

$$A_{opt} \sim \left(\frac{P}{\ell \gamma^2} \right)^{1/4} \quad (III-4.3)$$

Cette valeur est bien sur d'autant plus grande que γ est petit ; d'autre part on peut mieux focaliser les deux faisceaux quand la décharge est plus courte et A est alors plus grand. Ces raisonnements ne sont bien sur valables que si le résultat obtenu par (III-4.3) est inférieur à la valeur limite correspondant à la compensation complète (équation II-4.22)

$$A_{lim} = \frac{s(1-s)}{\sqrt{\pi}} \quad \frac{\Delta}{\gamma} \quad (III-4.4)$$

En effet, quand on atteint cette valeur limite, il ne sert plus à rien d'augmenter la puissance.

Si l'on disposait d'un laser en anneau (puissance monomode d'environ 1,5W au lieu de 250 mW actuellement), on gagnerait seulement un facteur

$$\left(\frac{1,5}{0,25} \right)^{1/4} = 1,6$$

En travaillant dans la cavité laser où dans une cavité en anneau extérieure à la cavité laser, on pourrait obtenir une puissance supérieure à 10W et un facteur

$$\left(\frac{10}{0,25} \right)^{1/4} = 2,5$$

On pourrait enfin obtenir des puissances beaucoup plus grandes (10 kW) en utilisant un laser à colorant pompé par flash [Dn 5] qui fournit des impulsions de durée ($\sim 1 \mu s$) beaucoup plus longue que les temps caractéristiques du système atomique. La compensation ne serait bien sur réalisée que pendant la durée de l'impulsion, mais la puissance serait alors suffisante pour que la compensation soit complète (A donné par III-4.4).

La compensation de l'effet Doppler permet de réaliser un milieu atomique présentant des caractéristiques très intéressantes. On vient de voir que le signal est augmenté dans un rapport qui peut être de l'ordre de Δ / γ .

Rappelons de plus que si les déplacements lumineux compensent l'effet Doppler dans une direction, ils le doublent dans la direction opposée (voir la discussion des pages 169 et 170) ; le milieu atomique présente donc une anisotropie avant arrière considérable.

Ces caractéristiques pourraient donner lieu à diverses applications. Supposons par exemple que l'on parvienne à compenser l'effet Doppler sur une transition amplifiante (Fig III-4.1)

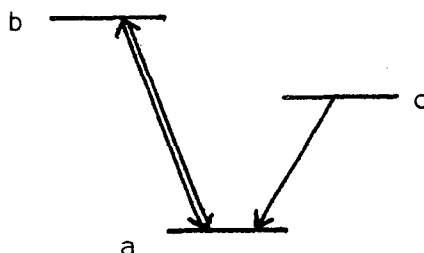


Fig III-4.1 : On sature la transition ba ; on réalise la compensation de l'effet Doppler sur la transition ca amplifiante (population de c plus grande que celle de a)

La compensation de l'effet Doppler se manifesterait par une augmentation du gain dans la direction avant (pour une configuration repliée telle que celle de la Fig III-4.1 ; dans la direction arrière pour une configuration dépliée). L'effet de compensation pourrait donc permettre de diminuer le seuil d'oscillation d'un milieu laser, de déclencher une oscillation sur ca en appliquant un laser saturant ba ; on pourrait aussi utiliser l'anisotropie avant-arrière pour obtenir une oscillation unidirectionnelle dans une cavité en anneau.

On peut penser mettre de tels effets en évidence sur les transitions à $1,152\ \mu$, $1,177\ \mu$ et $1,198\ \mu$ du Néon (transitions étudiées en absorption dans le § III-3.4). En effet, ces transitions sont amplifiantes dans certaines conditions (c'est le principe de fonctionnement du laser Helium-Néon). Pour réaliser une telle expérience, il faudrait vaincre plusieurs difficultés. On ne peut d'abord utiliser les mêmes transitions que précédemment pour provoquer les déplacements lumineux. En effet, supposons par exemple que l'on sature la transition à $6163\ \text{\AA}$ pour compenser l'effet Doppler à $1,198\ \mu$ (Fig III-1.3). La saturation à $6163\ \text{\AA}$ ramènerait dans le niveau $2p_2$ une fraction importante de la population du niveau $1S_3$ très peuplé

ce qui supprimerait l'inversion de population à $1,198 \mu$. Il faudrait donc plutôt provoquer les déplacements lumineux en saturant une transition couplant $2p_2$ à des niveaux vides situés plus haut en énergie. De telles transitions existent dans le Néon (niveaux $4d$, longueurs d'onde autour de $6000 \text{ \AA}$) mais les forces d'oscillateur correspondantes sont bien sur moins bonnes. Une difficulté plus importante provient du fait que les milieux laser He-Ne correspondent à des largeurs collisionnelles assez élevées (pression d'Hélium égale à plusieurs Torr) et à une longueur de décharge assez grande (au moins plusieurs dizaines de centimètres pour $1,198 \mu$); d'après (III-4.3) ceci limite beaucoup l'augmentation du signal due à la compensation. Il semble donc exclu de réaliser une valeur de A élevée, sauf si l'on disposait d'une puissance considérable (laser à flash). Notons toutefois une circonstance très avantageuse : les applications évoquées plus haut concernent pour la plupart des effets présentant des seuils : une variation faible de A (de 10% par exemple) peut donc avoir des conséquences spectaculaires si elle permet de franchir ce seuil.

De tels effets de déclenchement unidirectionnel provoqué par la compensation de l'effet Doppler ont été récemment observés sur des signaux de superradiance. L'expérience a été réalisée au MIT [Bf 3] sur une vapeur de sodium avec le schéma de niveaux représenté sur la Fig. III-4.2.

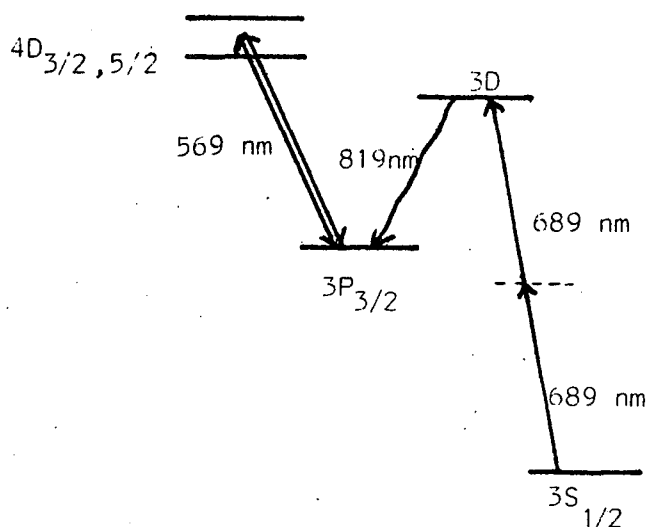


Fig. III-4.2 : Schéma des niveaux dans l'expérience du MIT [Bf 3]

Les niveaux 3D sont peuplés par absorption à deux photons à partir du niveau fondamental $3S_{1/2}$ ($\lambda = 689 \text{ nm}$). L'inversion de population ainsi réalisée sur $3D-3P_{3/2}$ peut être ajustée de façon à être au dessous ou au dessus du seuil de superradiance. La transition couplant $3P_{3/2}$ au doublet de structure fine $4D_{3/2}-4D_{5/2}$ est saturée par un laser à 659 nm , ce qui provoque la compensation de l'effet Doppler sur la transition $3D \rightarrow 3P_{3/2}$. La structure fine ($1,05 \text{ GHz}$) du niveau 4D joue le même rôle que la structure Zeeman dans nos expériences. Cette expérience a permis de vérifier expérimentalement que l'effet de compensation permettait de diminuer le seuil de superradiance et que l'effet présentait une grande anisotropie (diminution du seuil vers l'avant, augmentation du seuil vers l'arrière). Si l'inversion de population est réglée juste au dessous du seuil en l'absence du laser à 569 nm , l'application de ce laser déclenche la superradiance dans la direction avant ("unidirectional light by light switwhing").

On pourrait encore envisager d'autres applications : observation dans le domaine optique de phénomènes transitoires (superradiance, transitoires cohérentes,....) sur des temps longs (plusieurs dizaines de nanosecondes) grâce à la suppression du déphasage Doppler ; augmentation importante dans une direction bien déterminée des effets dispersifs (rotation Faraday par exemple)....

Ainsi , la méthode de compensation de l'effet Doppler par les déplacements lumineux dépendant de la vitesse, bien qu'elle ne paraisse pas pouvoir rivaliser dans le domaine des applications spectroscopiques avec les méthodes classiques telles que la spectroscopie de saturation [Bb] ou l'absorption à deux ou plusieurs photons [Bc] , peut avoir d'intéressantes applications parce qu'elle permet de créer des milieux atomiques aux propriétés inhabituelles : émission sans effet Doppler dans une vapeur dont la densité est beaucoup plus grande que celle d'un jet atomique, contrôle du gain sur une transition par l'application d'un laser sur une transition partageant un niveau commun, anisotropie avant arrière considérable.

A N N E X E 2

NOUVELLES RESONANCES APPARAISSANT DANS LA SPECTROSCOPIE

D'ABSORPTION SATURÉE DES SYSTEMES A TROIS NIVEAUX

Lettre publiée dans "Optics Communications"

A NEW TYPE OF RESONANCES IN SATURATED ABSORPTION SPECTROSCOPY OF 3-LEVEL SYSTEMS

M. HIMBERT, S. REYNAUD, J. DUPONT-ROC and C. COHEN-TANNOUDJI

Ecole Normale Supérieure and Collège de France, 75231 Paris Cedex 05, France

Received 21 May 1979

We report the experimental observation of new resonances in saturated absorption spectra of a $J = 1$ to $J = 0$ transition of Ne atoms in a static magnetic field. These resonances, which are distinct from the well-known Zeeman and cross-over resonances, result from the modification of stimulated Raman processes by the simultaneous resonant saturation of an optical transition. The light-shifts of the various resonances are also studied.

1. Introduction

Saturated absorption spectroscopy [e.g. 1], with its recent developments [e.g. 2], is now a general and powerful method for investigating atomic structures. Narrow sub-Doppler resonances are observed on the absorption (or dispersion) of a detection beam when atoms are simultaneously interacting with a counterpropagating pump beam.

An interesting situation occurs when optical transitions joining a level b to two sublevels a and a' of a different level are considered. The structure $a - a'$ can be measured by comparing the two sub-Doppler saturation resonances ab and $a'b$. It is well-known that halfway between these two resonances, one observes a so-called "cross-over" resonance corresponding for example to the modification of the absorption on ab due to the saturation of $a'b$. We show in this paper that it is possible to observe two extra resonances which are twice farther from the cross-over than the two resonances ab and $a'b$ and which, to our knowledge, have not yet been predicted or reported.

We interpret these new resonances as related to a modification of the stimulated Raman processes between a and a' (involving one photon from both counter-propagating beams) due to a simultaneous resonant saturation of ab or $a'b$ (by the pump beam). Therefore, these resonances, which we will call from now Raman type resonances, involve at least two

pump photons, and require higher intensities of the pump beam than the ab , $a'b$ and cross-over resonances. We should point out that in 2-level systems, if processes involving more than one detection photon are, as in this paper, excluded (weak detection beam), higher order processes (with respect to the pump beam) don't give rise to any new structure (they produce only a power broadening). This clearly distinguishes the Raman type resonances described in this paper, which are specific of 3-level systems and which do not require an intense detection beam, from other higher order resonances which can also be observed on 2-level systems but which involve at least two photons from the detection beam, or use for the pump a standing wave rather than a running one [3].

In this letter we will restrict ourselves to a simple discussion based on the consideration of population holes. It is well known that the dynamical Stark splitting produced by the intense pump beam plays an important role for a quantitative understanding of the width and the depth of the saturation dip [4]. We have performed a complete calculation of saturated absorption of 3-levels systems based on the dressed atom approach and the use of frequency diagrams, which confirms all the conclusions of this paper [5].

2. Experimental set up

Our experiment has been done on the transition $2p_3$ ($J=0$) to $1s_4$ ($J=1$) of ^{20}Ne at 6074 Å (Paschen notations). A weak d.c. discharge ($i = 20$ mA) is maintained in a cell filled with 0.2 Torr of natural Ne. A solenoid produces a static magnetic field B_0 (up to 300 gauss) parallel to the direction of two counterpropagating beams, the pump beam and the detection beam (fig. 1a).

With such a geometry, the excitation and detection polarizations can be only a superposition of σ^+ and σ^- , so that only three levels are involved (fig. 1b): $a(1s_4, m=-1)$, $a'(1s_4, m=+1)$, $b(2p_3, m=0)$. The two Zeeman components of the optical line ab and $a'b$ correspond respectively to the polarizations σ^+ and σ^- . Such a 3-level system presents the following two advantages. First, the Zeeman splitting 2δ between a and a' can be changed by varying B_0 ($2\delta = 4.1$ MHz/gauss). Second, the ratio K/K' of the two Rabi frequencies K and K' characterizing the coupling of the pump laser with ab and $a'b$ can be adjusted by changing the relative amount of σ^+ and σ^- in the pump polarization.

The two laser beams come from the same dye laser and have a frequency ω_L close to the atomic frequency ω_0 in zero magnetic field. The power of the pump beam is of the order of 100 mW, the detection beam being attenuated at least by a factor 200 in order to avoid any saturation effect due to this beam. The pump beam is chopped and the synchronous modulation of detection beam recorded versus ω_L .

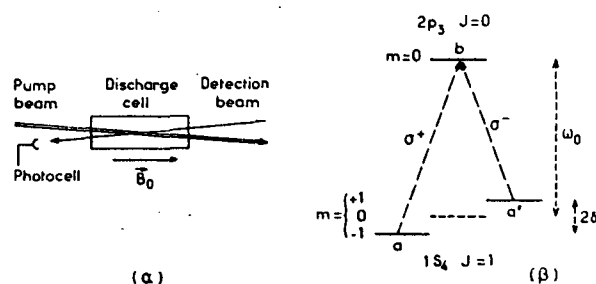


Fig. 1. a) Relative disposition of the static magnetic field B_0 and of the two counterpropagating pump and detection beams. b) Energy level scheme.

3. Saturation resonances

In order to understand the various resonances which can be observed on the absorption of the detection beam, it will be useful to introduce first the frequencies

$$\omega_p(v) = \omega_L(1 + v/c), \quad \omega_d(v) = \omega_L(1 - v/c), \quad (1)$$

which are the apparent frequencies of the pump and detection beams in the rest frame of an atom of velocity v . For certain values of ω_L only (which actually give the position of saturation resonances) it is possible to find a velocity v such that the corresponding atoms interact resonantly with both beams.

The simplest saturation resonance corresponds to a situation where both beams are simultaneously resonant on the same Zeeman transition, $a'b$ for example (fig. 2a). The saturation of $a'b$ by the σ^- component of the pump beam (double arrow) reduces the absorption of the σ^- component of the detection beam (single arrow). Such a resonance occurs for $\omega_p(v) = \omega_d(v) = \omega_0 - \delta$ which, according to (1) gives $\omega_L = \omega_0 - \delta$, $v=0$. A similar situation appears for $\omega_L = \omega_0 + \delta$, $v=0$ (saturation of ab). Another type of resonance is the cross-over resonance appearing when two different transitions sharing a common level are simultaneously and resonantly excited. For example (fig. 2b), the saturation of ab by the σ^+ component of the pump increases the population of b and, consequently, reduces the absorption on $a'b$ of the σ^- component of the detection beam. The position of this resonance is given by $\omega_p(v) = \omega_0 + \delta$, $\omega_d(v) = \omega_0 - \delta$ i.e., according to (1), $\omega_L = \omega_0$, $v/c = \delta/\omega_L$ [exchanging the polarization of both beams gives the same resonance at $\omega_L = \omega_0$ but with $v/c = -\delta/\omega_L$].

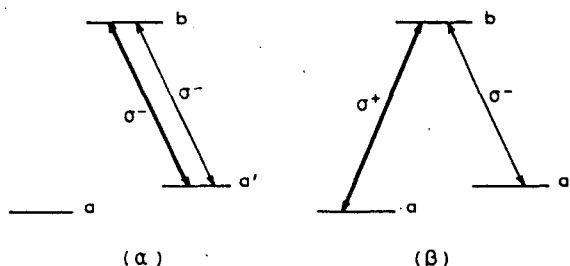


Fig. 2. Resonant processes occurring in the Zeeman saturation resonance $a'b$ (a), and the cross-over one (b). Double arrows: pump photons. Single arrows: detection photons.

The new resonances studied in this work correspond to higher order processes involving at least two pump photons (but only one detection photon). As the previous resonances, they appear for values of ω_L such that two processes can be simultaneously resonant for the same atom* for example those of fig. 3 α . There is first a stimulated Raman process between a and a' (either from a to a' by absorption of a σ^+ pump photon and stimulated emission of a σ^- detection photon, or symmetrically, from a' to a by the reverse processes). On the other hand, we have also a resonant saturation of $a'b$ by the σ^- component of the pump which reduces the population of a' and consequently, modifies the balance between the two symmetric Raman processes $a \rightarrow a'$ and $a' \rightarrow a$ in favour of the first one, producing an amplification of the σ^- component of the detection beam, or, equivalently, a reduction of its absorption. The two resonance conditions $\omega_p(v) - \omega_d(v) = 2\delta$, $\omega_p(v) = \omega_0 - \delta$ give [according to (1)], $\omega_L = \omega_0 - 2\delta$, $v/c = +\delta/\omega_L$. One would get similarly, for the processes of fig. 3 β , $\omega_L = \omega_0 + 2\delta$, $v/c = -\delta/\omega_L$.

If we restrict ourselves to very weak detection beams, and consequently, to processes involving only one detection photon, one can easily show that there are no other resonances than the five previously discussed and occurring at ω_0 , $\omega_0 \pm \delta$, $\omega_0 \pm 2\delta$. The single detection photon is necessarily involved, either in an optical resonance, and then the pump photons must be resonant with the same transition (fig. 2 α), or with the other one (fig. 2 β), or in a resonant Raman process,

* This situation reminds the one studied by Woerdman and Schuurmans [6] where one observes cross-resonances between one and two-photon absorption processes in a three level system with a nearly resonant intermediate level.

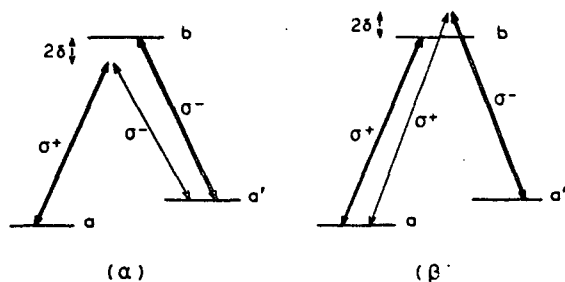


Fig. 3. Resonant processes occurring in the new Raman type resonances: $\omega_0 - 2\delta$ (α), and $\omega_0 + 2\delta$ (β).

in which case the second resonant process can be only an optical resonance for the pump (fig. 3). Any higher order process (with respect to the pump) would correspond to additional absorptions and stimulated emissions of pump photons, leading to well known radiative effects (power broadening and light shifts).

4. Experimental results

In order to simplify the spectrum, we have first taken a pure polarization for the detection beam (σ^- for example), so that the resonances $\omega_0 + \delta$ and $\omega_0 + 2\delta$ disappear. It must be pointed out however that the pump beam must contain both polarizations σ^+ and σ^- if one wants the Raman type resonance $\omega_0 - 2\delta$ to be observable (see fig. 3 α). The relative amount of σ^+ and σ^- remains a free parameter which is optimized, according to the following considerations.

Let's first show that the ratio of the amplitudes of the two resonances $\omega_0 - 2\delta$ and $\omega_0 - \delta$ is of the order of $(K/\delta)^2$. In both cases (see fig. 2 α and 3 α), the reduction of the population of a' due to the saturation of $a'b$ by the pump is the same. But the height of the Raman type resonance is proportional, not only to the intensity of the detection beam, as the Zeeman resonance, but also to the intensity K^2 of the σ^+ component of the pump beam divided by the square of the energy defect 2δ of the non resonant intermediate state appearing in the Raman process of fig. 3 α . It follows that K must be taken as high as possible.

On the other hand, the width of the various resonances are determined by the power broadening due to the resonant component of the pump, which is the σ^+ component for the cross-over (width K) and the σ^- one for the Zeeman and Raman type resonances (width K'). If one wants the Raman type resonance to be well resolved from the stronger Zeeman resonance, one must therefore take their common width K' small compared to their splitting δ , but not smaller than the homogeneous width γ if one wants to maintain an appreciable saturation of $a'b$ by the σ^- component of the pump. To summarize, the pump polarization must be very close to σ^+ (K as large as possible) and adjusted so that $K' \sim \gamma$.

One can see on fig. 4 some experimental curves obtained in such conditions. They clearly demonstrate the existence of the Raman type resonances. The two

narrow Zeeman and Raman type resonances move when the static field B_0 is increased, contrarily to the broad cross-over one. As predicted above, the height of the Raman type resonance decreases when δ is increased.

One can also detect the modulation of the previous signal in phase with a small modulation of the static field around B_0 . The cross-over resonance, which is B_0 -independent, disappears whereas the Zeeman and Raman type resonances remain as two narrow dispersion shaped curves (see fig. 5). Such a signal has been used for measuring the position of the Zeeman and Raman type resonances versus δ . The experimental points represented on fig. 6 show an important deviation from the linear laws $\omega_0 - \delta$ and $\omega_0 - 2\delta$ predicted above (dotted lines of fig. 6). In particular, at

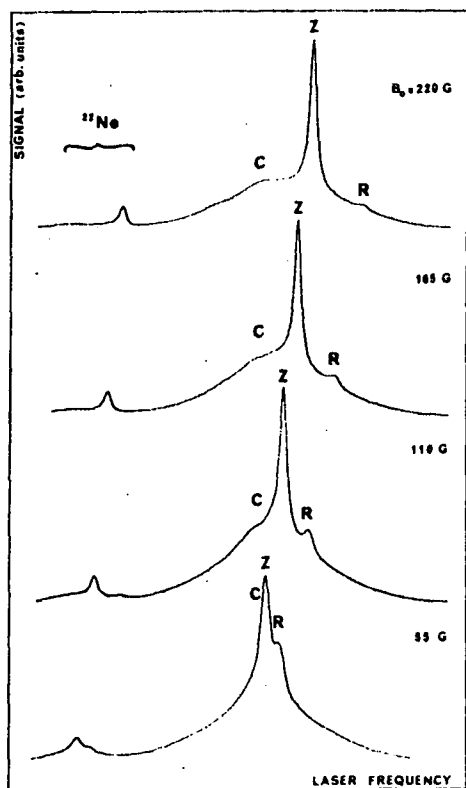


Fig. 4. Saturated absorption signal (arbitrary units) versus laser frequency ω_L for various magnetic fields B_0 . C, Z, R respectively indicate the cross-over, Zeeman and Raman type resonances for ^{20}Ne . The Zeeman resonances for ^{22}Ne , appearing on the left side (higher frequencies), fix the frequency scale (isotopic shift equal to 1704 MHz).

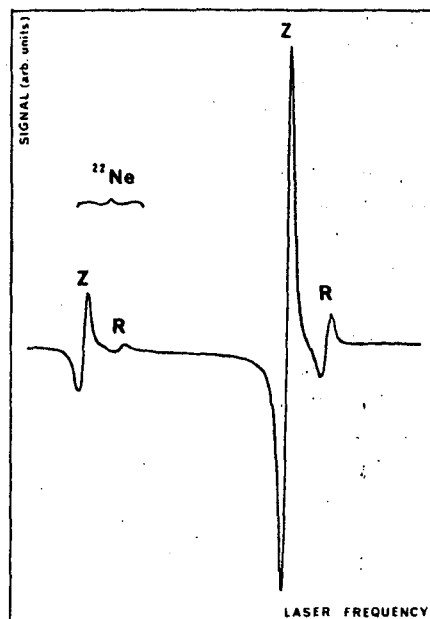


Fig. 5. Modulation of the saturated absorption signal (arbitrary units) in phase with a small modulation of the static field around $B_0 = 165$ G versus laser frequency ω_L . The cross-over resonance, which is B_0 -independent, disappears. The Zeeman (Z) and Raman type (R) resonances of ^{20}Ne and ^{22}Ne remain as dispersion shaped curves.

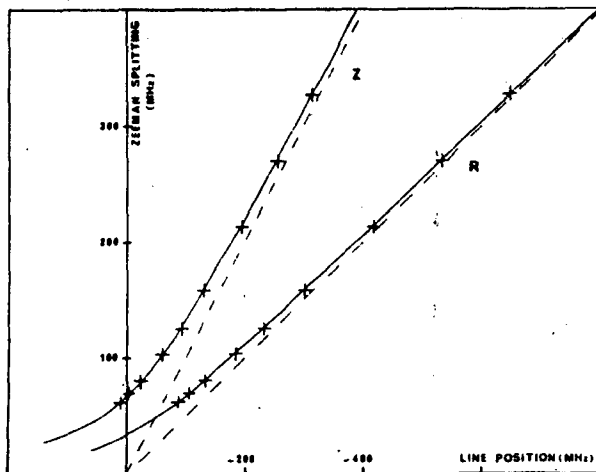


Fig. 6. Positions of the Zeeman (Z) and Raman type (R) resonances of ^{20}Ne (with respect to the atomic frequency in zero-field) for various Zeeman splittings δ . The dotted lines represent the linear laws, $\omega_0 - \delta$ for Z and $\omega_0 - 2\delta$ for R. The full lines give the theoretical light-shifted positions. The crosses are the experimental results.

low magnetic fields, the shift of the line may be as large as the Zeeman effect. These deviations are actually due to light shifts. Coming back to fig. 2a and 3a, one sees that the σ^+ component of the pump beam, which is non resonant on the transition ab (by an amount -2δ) is responsible for an upwards light shift $\epsilon = (K/2)^2/2\delta$ of level b and for a downwards one, $-\epsilon$, of level a (the light shift produced by the much weaker σ^- component of the pump beam is negligible). Introducing these light shifts in the resonance conditions written above, one easily deduces the shifted positions, $\omega_0 - \delta + \epsilon$ for the Zeeman resonance and $\omega_0 - 2\delta + (\epsilon/2)$ for the Raman type one. These theoretical predictions represented by the full lines of fig. 6 are in excellent agreement with the experimental points.

5. Conclusion

We have demonstrated the existence of new resonant structures in saturated absorption spectra of 3-level systems. We have identified the physical processes at the origin of these new resonances and checked the theoretical predictions concerning in particular the light shifts.

These new resonances always exist in saturated absorption spectra of 3-level systems even if the experimental conditions are not, as here, optimized for having them resolved from the main resonances. At high pump

intensities, it could be necessary to take them into account for an accurate analysis of the lineshape of the main lines, in particular in ultra high resolution spectroscopy of multilevel systems, or in frequency standards.

We would like to thank M. Ducloy, M. Dumont and C. Borde for helpful comments.

References

- [1] V.S. Letokhov and V.P. Chebotayev, Non linear laser spectroscopy, Springer series in optical sciences 4 (Springer-Verlag, 1976) and references therein.
- [2] C. Wieman and T.W. Hansch, Phys. Rev. Lett. 36 (1976) 1170;
C. Delsart and J.C. Keller, Laser spectroscopy III, eds. J.L. Hall and J.L. Carlsten, Springer series in optical sciences 7 (Springer-Verlag, 1977) p. 154;
C.J. Borde, Springer series in optical sciences 7 (Springer-Verlag, 1977) p. 121;
I. Colomb and M. Dumont, Optics Comm. 21 (1977) 143;
M. Pinard, C.G. Aminoff and F. Laloe, Phys. Rev. A, to be published.
- [3] J. Reid and Takeshi Oka, Phys. Rev. Lett. 38 (1977) 67.
- [4] S. Haroche and F. Hartman, Phys. Rev. A 6 (1972) 1280.
- [5] M. Himbert, S. Reynaud and C. Cohen-Tannoudji, to be published.
- [6] J.P. Woerdman and M.F.H. Schuurmans, Optics Comm. 21 (1977) 243.

A N N E X E 3

CORRELATIONS TEMPORELLES ENTRE PHOTONS EMIS DANS LES DEUX

BANDES LATERALES DU TRIPLET DE FLUORESCENCE

Lettre publiée dans "Physical Review Letters "

Time Correlations between the Two Sidebands of the Resonance Fluorescence Triplet

A. Aspect and G. Roger

Institut d'Optique, Université Paris-Sud, F-91406 Orsay, France

and

S. Reynaud, J. Dalibard, and C. Cohen-Tannoudji

Ecole Normale Supérieure and Collège de France, F-75231 Paris, France

(Received 30 May 1980)

A new type of time correlation analysis of resonance fluorescence is presented. A strontium atomic beam is excited by a 28-Å-off-resonance laser. The photons of the two sidebands of the fluorescence triplet are shown to be emitted in a well-defined time order. A simple interpretation of this effect is given which implies a quantum jump of the atom from the lower to the upper state through a multiphoton process.

PACS numbers: 32.80.Kf, 32.50.+d, 42.50.+q

Resonance fluorescence (i.e., scattering of radiation by free atoms irradiated by a resonant or quasiresonant laser beam) has been extensively studied during the last few years. First, it has been predicted¹ and observed² that, for two-level atoms and at high laser intensities, the fluorescence spectrum consists of three components (fluorescence triplet). More recently, the distribution of time intervals between photoelectric counts recorded on the scattered light has been measured, giving evidence for an antibunching of the fluorescence photons originating from a single atom.³

These two types of experiments emphasize, respectively, the frequency or time features of resonance fluorescence. One can also consider the possibility of a mixed analysis dealing with the time correlations between fluorescence photons previously selected through frequency filters⁴ (the frequency resolution $\Delta\nu$ introduces, of course, an uncertainty $\Delta t = (\Delta\nu)^{-1}$ in the determination of the emission time). If, for example, the three components of the fluorescence triplet are well separated (their splitting Ω being much larger than their widths γ), one can use filters centered on any one of these components and having a width $\Delta\nu$ such that $\gamma \ll \Delta\nu \ll \Omega$. With such filters, it is possible to determine which components of the triplet the detected photons are coming from and, simultaneously, to study the

statistics of the emission times with a resolution Δt better than the atomic relaxation time γ^{-1} .

In this Letter, we report the first experimental investigation of time correlations between frequency-filtered fluorescence photons. In this experiment, the detuning $\delta = \omega_L - \omega_0$ between the laser and atomic frequencies ω_L and ω_0 is much larger than the Rabi nutation frequency ω_1 (off-resonance excitation) so that the splitting $\Omega = (\omega_1^2 + \delta^2)^{1/2}$ is simply equal to the detuning δ . The three components of the triplet are therefore located at ω_L for the central component (Rayleigh scattering) and $\omega_A = \omega_L + \Omega \approx 2\omega_L - \omega_0$ and $\omega_B = \omega_L - \Omega \approx \omega_0$ for the two sidebands. The experiment hereafter described shows that the photons of these two sidebands, selected by two filters centered at ω_A and ω_B , are correlated and emitted in a well-defined order (ω_A before ω_B).

We use a strontium atomic beam ($^1S_0 - ^1P_1$ resonance line; $\lambda_0 = 460.7$ nm) irradiated by the 28-Å-off-resonance blue line of an argon-ion laser ($\lambda_L = 457.9$ nm). The multimode-laser light (1 W power) is focused onto the atomic beam (laser-beam waist less than 10 μ m) and focused back by a spherical mirror in order to double the laser intensity in the interaction region. In these conditions, the Rabi nutation frequency ω_1 is much smaller than the detuning δ ($\omega_1/2\pi = 80$ GHz and $\delta/2\pi = 4000$ GHz) and the central line of the fluorescence triplet is about 10^4 (i.e., $4\delta^2/\omega_1^2$) times

more intense than the two sidebands (the wavelengths of which are $\lambda_A = 455.1$ nm and $\lambda_B = \lambda_0$).

The experimental setup (described in more detail elsewhere⁴) is sketched in Fig. 1. The density of the atomic beam can reach 10^{12} atoms per cubic centimeter. The fluorescence light is collected by wide-aperture aspherical lenses ($f/0.8$). Bicone-shaped baffles have been found appropriate to reduce the detected stray light to a level smaller than the Rayleigh fluorescence light. The two sidebands are selected in the two detection channels, respectively, by a grating monochromator tuned on λ_A and an interference filter designed for λ_B . The stray light and the Rayleigh fluorescence light (both at the laser wavelength) are well rejected by the two filters (the transmission at the laser wavelength compared to the maximum transmission is 3×10^{-4} for the monochromator and 10^{-3} for the interference filter). The photomultiplier dark rate is small enough to be ignored. The overall detection efficiency (including collection solid angle, filter transmission, and photomultiplier quantum efficiency) is of one count per 500 emitted photons. The pulses from the two detection channels are amplified and shaped. They then drive a time-to-amplitude converter (TAC) connected to a pulse-height analyzer (PHA) which accumulates the number of detected pairs as a function of the detection separation time. The cable delays are adjusted so that a null separation time yields a point in the middle range of the spectrum which therefore exhibits negative as well as positive values for the delay τ between the emission of the two ω_A and ω_B photons.

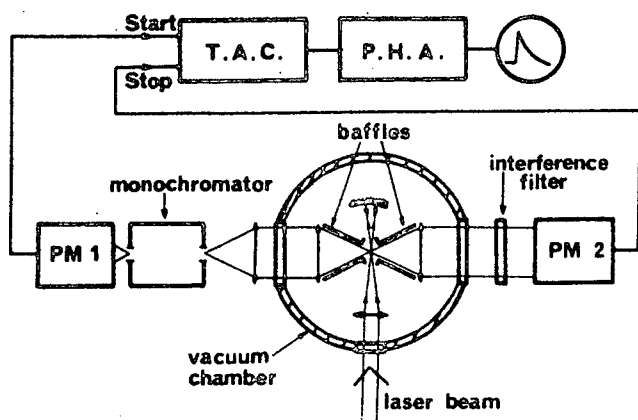


FIG. 1. Experimental setup. The strontium atomic beam is along the axis of the vacuum chamber (PM, photomultiplier; TAC, time-to-amplitude converter; PHA, pulse-height analyzer).

A typical result is shown in Fig. 2(a). The large signal which stands out above an accidental coincidence background indicates that the emissions in the two sidebands are strongly correlated. In addition, the abrupt rising of the signal across the null delay $\tau = 0$ means that the two correlated photons are emitted in a given time order: the photon in the sideband ω_A before the photon in the sideband ω_B . Then, the correlation signal decreases exponentially with the delay τ . The measured time constant (4.7 ± 0.2 ns) coincides with the radiative lifetime of the upper level $^1P_1$ of strontium.⁶ The background is mainly due to accidental coincidences between photons at the laser frequency not rejected by the frequency filters.

In order to check the importance of the frequency selection at the sideband wavelength, we have varied the wavelength of the monochromator [Fig. 2(b)]. Shifting it towards the laser wavelength increases the background because of a poorer rejection of the Rayleigh and stray light. The signal exhibits a maximum at the expected wavelength λ_A proving that the signal is due to the sidebands of the triplet. We thus get experimental evidence for the sidebands of the fluorescence triplet in conditions where they are 10^4 times weaker than the central component. The excellent signal to background ratio emphasizes the interest of correlation methods since the sidebands could not be easily detected in the frequen-

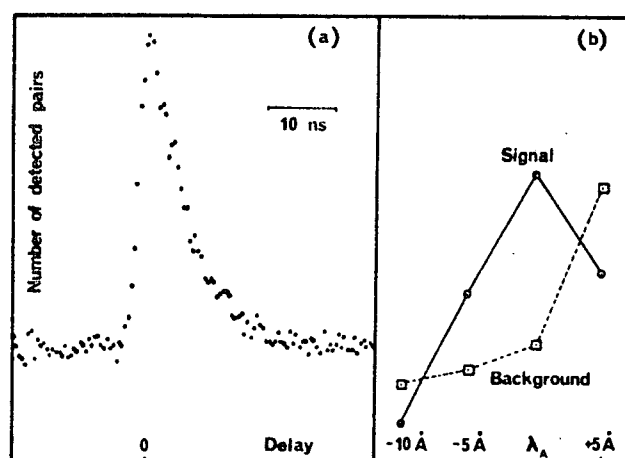


FIG. 2. (a) Typical experimental curve giving the number of detected pairs of photons (ω_A, ω_B) as a function of the emission delay. The maximum channel height is 1000 counts for an accumulation time of 6 h. The channel width is 0.4 ns. (b) Variation of the signal and background heights when the monochromator wavelength is varied around $\lambda_A = 455.1$ Å.

cy spectrum even with our high-rejection monochromator.

We interpret now these results with a perturbative approach which is valid since the laser is far enough from resonance (the expansion parameter $\epsilon = \omega_L/2\delta$ is equal to 10^{-2} in our experiment).⁷ At the lowest order, we have the elastic-Rayleigh-scattering process [Fig. 3(a)] giving rise to the central component of the triplet at ω_L (energy conservation). The rate of this process is $\Gamma\epsilon^2$ per atom where Γ is the natural width of the upper level e . It is proportional to the laser intensity I_L . The two sidebands are explained by a nonlinear scattering process [Fig. 3(b)] involving the absorption of two laser photons and the emission of two fluorescence photons having frequencies ω_α and ω_β linked by the energy conservation relation $2\omega_L = \omega_\alpha + \omega_\beta$. An intermediate resonance occurs when the atom reaches the upper state e after the absorption of the second laser photon. This explains why ω_α and ω_β are distributed in two sharp lines (width Γ), respectively, centered on $\omega_\alpha = 2\omega_L - \omega_0$ and $\omega_\beta = \omega_0$. The rate of the whole process is $\Gamma\epsilon^4$ per atom which means that the weight of each sideband is proportional to I_L^2 . The diagram of Fig. 3(b) suggests to divide the scattering process in two steps. First, the atom jumps from g to e by a three-photon process (absorption of ω_L , emission of ω_α , absorption of ω_L) which takes place during a very short time, smaller than 10^{-12} s in our experiment (inverse of the energy defect δ in the nonresonant intermediate states). Then, the atom spontaneously emits ω_β with a mean lifetime Γ^{-1} .⁸

This picture provides a simple interpretation of

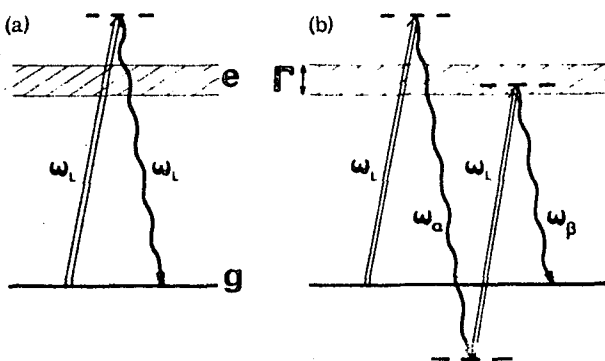


FIG. 3. (a) First-order elastic-Rayleigh-scattering process. (b) Second-order nonlinear scattering process giving rise to the two sidebands of the fluorescence triplet.

all experimental features such as the strong correlation between the photons of the two sidebands (they are emitted by pairs), the time ordering between them, and the exponential decay with a time constant Γ^{-1} . The "percussional" character of the excitation of e suggests that, if a structure exists in the upper level, the exponential decay of the correlation signal may be modulated at a frequency equal to the spacing between the sublevels, as in perturbed correlations in atomic or nuclear cascades.⁹ Finally, two important features of the experiment can be made clear. First, it is not necessary to use a single-mode laser. The intensity fluctuations do not destroy the correlation signal since their correlation time (inverse of the laser bandwidth) is long compared to the characteristic time of the excitation process δ^{-1} .¹⁰ Second, as in the antibunching experiment, the observed correlation signal is due to pairs of photons emitted by the same atom (single-atom effect). Nevertheless, it has been observed with a great number N of atoms in the field of view ($N = 2 \times 10^4$). As a matter of fact, multiatom effects (mainly Rayleigh-Rayleigh coincidences giving rise to the background and proportional to $N^2\epsilon^4$) could overcome the signal (proportional to $N\epsilon^4$) but they are reduced to a sufficiently low level by the filters which reject the Rayleigh frequency ω_L .

As a conclusion for this perturbative discussion we can emphasize the unusual fact that the detection of the first filtered photon is a signature of a quantum jump of the atom from the lower to the upper state through a multiphoton process. Note the difference with the situation where no filters are used (antibunching experiment³) and where the detection of one photon is associated with a quantum jump from the upper to the lower state.

Finally, it seems interesting to point out some similarities between the correlation signal described above and those observed in atomic or nuclear cascades $a-b-c$. In such a cascade, a pair of photons at different frequencies is also emitted with a given order (the photon associated with transition $a-b$ before the one associated with $b-c$) and the correlation signal decreases exponentially (with the radiative lifetime of b). Actually, the analogy between these two situations is not fortuitous. Resonance fluorescence photons may indeed be considered as photons spontaneously emitted by the combined system of atom plus laser photons interacting together, the so called "dressed atom" which, as a consequence of the quantization of the laser field, has an infinite number of energy levels forming a quasi-

periodic array.¹¹ A sequence of fluorescence photons therefore appears as a cascade of the dressed atom downwards its energy diagram. Such a picture allows us to interpret the signal here investigated as a radiative cascade signal,¹² where the cascading system is not the bare atom but the dressed one.

¹B. R. Mollow, Phys. Rev. **188**, 1969 (1969).

²F. Schuda, C. R. Stroud, and M. Hercher, J. Phys. B **7**, L198 (1974); F. Y. Wu, R. E. Grove, and S. Ezekiel, Phys. Rev. Lett. **35**, 1426 (1975); W. Hartig, W. Rasmussen, R. Schieder and H. Walther, Z. Phys. A **278**, 205 (1976).

³H. J. Kimble, M. Dagenais, and L. Mandel, Phys. Rev. Lett. **39**, 691 (1977).

⁴C. Cohen-Tannoudji and S. Reynaud, Philos. Trans. Roy. Soc. London, Ser. A **293**, 223 (1979).

⁵A. Aspect, C. Imbert, and G. Roger, to be published.

⁶D. W. Fahey, W. F. Parks, and L. D. Scheerer, Phys. Lett. **74A**, 405 (1979), and references cited therein.

⁷A detailed calculation confirming all the following results will be published elsewhere.

⁸These experimental features might also result from a hyper Raman process bringing the atom from g to e through a virtual excitation in a Rydberg state (by the

absorption of two laser photons) and the emission of a $2\omega_L - \omega_0$ fluorescence photon. But the rate of such a process, evaluated from the corresponding energy defects and oscillator strengths, is shown to be 6000 times smaller than the rate of the process studied in this paper. Moreover, we have experimentally verified that the ω_A photons are linearly polarized along the laser polarization, as expected from the diagram in Fig. 3(b). This would not be the case for the hyper Raman process which can bring the atom from g to any sublevel of e .

⁹A. M. Dumont, C. Camhy-Val, M. Dreux, and R. Vitry, C. R. Acad. Sci. **271B**, 1021 (1970); M. Popp, G. Schäfer, and E. Bodenstedt, Z. Phys. **240**, 71 (1970); R. M. Steffen and H. Frauenfelder, in *Perturbed Angular Correlations*, edited by E. Karlsson, E. Matthias, and K. Siegbahn (North-Holland, Amsterdam, 1964).

¹⁰Furthermore, for the nonlinear process studied here, a multimode laser is more efficient than a single-mode laser with the same intensity by a factor $\langle Q^2 \rangle / \langle Q \rangle^2$, which is equal to 2 for Gaussian fluctuations.

¹¹C. Cohen-Tannoudji and S. Reynaud, in *Multiphoton Processes*, edited by J. H. Eberly and P. Lambropoulos (Wiley, New York, 1978), p. 103.

¹²The picture of the dressed-atom cascade remains valid at resonance where a perturbative treatment would no longer be possible at high laser intensities. As shown in Ref. 4, the emissions in the sidebands remain strongly correlated. It must be noted, however, that the correlation signal becomes symmetric.

QUATRIEME PARTIE

ETUDE ALGEBRIQUE DES SPECTRES DE FLUORESCENCE

C H A P I T R E IV-1

INTRODUCTION

Dans cette quatrième et dernière partie, nous discutons la méthode de calcul des spectres de vapeur qui est utilisée habituellement (on se reportera par exemple à la référence [Bd 5]). Cette méthode, que l'on appellera ici la méthode algébrique, est exposée dans le prochain chapitre (§ IV-2). Elle est fondée sur le fait que le spectre d'émission d'un atome peut être mis sous la forme d'une fraction rationnelle. En utilisant les propriétés de décomposition en éléments simples des fractions rationnelles, on peut donc exprimer le spectre d'émission de la vapeur obtenu après intégration sur les vitesses en fonction d'un certain nombre de résidus. L'expression ainsi obtenue sera appelée l' "expression algébrique" du spectre. Cette expression est habituellement utilisée seulement dans la limite Doppler ($\omega_1 \ll \Delta$), mais nous verrons qu'elle peut être généralisée à $\omega_1 > \Delta$; ainsi généralisée, l'expression algébrique décrit de manière exacte à la fois l'interaction atome-laser, l'effet Doppler et la relaxation et ceci, quelque soit la valeur de ω_1 depuis $\omega_1 \ll \gamma$ jusqu'à $\omega_1 \gg \Delta$.

La méthode algébrique présente toutefois un inconvénient important : elle ne permet pas de discuter qualitativement l'allure des spectres. Bien que tous les effets soient contenus dans l'expression algébrique et apparaissent quand on la calcule explicitement (sur ordinateur où "à la main" quand c'est possible), il est en effet très difficile de les prévoir simplement avant ce calcul explicite.

Nous disposons par contre d'une autre méthode, la méthode graphique, dont nous avons vu dans la deuxième partie qu'elle était très bien adaptée à la discussion qualitative de l'allure des spectres et à l'exploration d'effets nouveaux. Elle nous a permis par exemple de retrouver simplement les conditions d'observation d'un doublet Autler Townes à la limite Doppler ($\omega_1 \ll \Delta$) et de prévoir des structures nouvelles et intéressantes dans des champs plus intenses ($\omega_1 \gg \Delta$ ou $\omega_1 \sim \Delta$) ou quand la dégénérescence Zeeman de l'un des niveaux couplés au laser est levée par un champ magnétique (système à trois niveaux étudié dans le § II-4). La méthode graphique permet de plus de calculer quantitativement les spectres en tenant compte, par une convolution, de la largeur des raies d'émission

Nous disposons donc de deux méthodes pour étudier les spectres de vapeur et nous les avons en fait utilisées toutes les deux dans la deuxième partie : la méthode graphique nous a permis de discuter divers effets physiques et de dégager les conditions optimales d'observation des effets nouveaux, mais les spectres présentés en illustration de cette discussion graphique ont été calculés par la méthode algébrique, mieux adaptée au calcul explicite.

Dans le chapitre IV-3 nous montrons en plus que ces deux méthodes, si différentes à priori, sont en fait très voisines ; on peut en effet interpréter la méthode algébrique par une généralisation dans le plan complexe de la méthode graphique. On introduit dans ce but un diagramme de fréquence complexe où les fréquences d'émission, complexes, contiennent à la fois la position de la raie (partie réelle) et sa largeur (partie imaginaire). La construction graphique de la deuxième partie se généralise alors de façon très naturelle au plan complexe et on peut transformer l'expression algébrique pour lui donner une forme généralisant l'expression graphique de la deuxième partie.

Comme dans la deuxième partie, nous nous limitons ici aux cas où la population du niveau émetteur n'est pas couplée au laser.

C H A P I T R E IV-2

LA METHODE ALGEBRIQUE

Nous exposons dans ce chapitre, le principe et les résultats de la méthode algébrique. Nous rappelons d'abord (§ IV-2.1) que le spectre d'émission d'un atome peut être écrit sous la forme d'une fraction rationnelle (rapport de deux polynômes). En utilisant les propriétés de décomposition en éléments simples des fractions rationnelles ("méthode des résidus"), nous en déduisons ensuite (§ IV-2.2) une expression algébrique pour le spectre d'émission de la vapeur. Contrairement à ce qui est fait habituellement, nous tenons compte de l'effet de la distribution gaussienne des vitesses, de façon à ce que l'expression obtenue soit valable pour toute vapeur du rapport ω_1 / Δ et pas seulement à la limite Doppler ($\omega_1 \ll \Delta$).

IV-2.1 L'expression rationnelle du spectre d'émission d'un atome

Le fait que le spectre d'émission (ou d'absorption) d'un atome soumis à une excitation laser puisse être écrit sous la forme d'une fraction rationnelle est démontré dans de très nombreux articles ; on pourra se reporter par exemple aux références [Bd 3,4,5 - Be 4] pour le spectre sur une transition partageant un niveau commun avec la transition saturée ou au calcul du triplet de fluorescence par Mollow [Ab 6] (voir aussi [Ab 24]) ou enfin au travail de Haroche et Hartmann sur les spectres d'absorption saturée [Bb 1] .

Rappelons dans les grandes lignes comment on peut démontrer cette expression rationnelle. Le spectre d'émission s'exprime à partir des fonctions de corrélation du dipole atomique (voir le calcul du spectre de fluorescence sur la transition saturée dans la première partie de cette thèse (§ I-3.2 et § I-3.4))

$$S(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L) = \text{Re} \frac{1}{\pi} \int_0^{\infty} \langle D^+(t+\tau) D^-(t) \rangle \exp(-i \tilde{\omega} \tau) d\tau \quad (\text{IV-2.1})$$

(D^+ et D^- sont les parties ascendante et descendante du dipole atomique : Re signifie "partie réelle", $\tilde{\omega}$ est la fréquence d'émission dans le référentiel propre de l'atome dans lequel le calcul doit être mené ; on a fait apparaître explicitement

la dépendance du spectre par rapport à la fréquence apparente $\tilde{\omega}_L$ du laser dans le référentiel propre de l'atome).

Le théorème de régression quantique (voir § 1-3.2) permet de relier la dynamique de $\langle D^+(t+\tau) D^-(t) \rangle$ (pour $\tau > 0$ ce qui est le cas dans IV-2.1) à la dynamique de $\langle D^+(t) \rangle$. Il nous faut donc obtenir l'équation d'évolution de $\langle D^+(t) \rangle$; on peut la décrire par une équation pilote de la forme

$$\frac{d}{dt} \langle \mathcal{D}^+ \rangle = iM \langle \mathcal{D}^+ \rangle \quad (\text{IV-2.2})$$

où $\langle \mathcal{D}^+ \rangle$ est une matrice colonne dont les éléments sont d'une part $\langle D^+ \rangle$, d'autre part d'autres composantes dont l'évolution est couplée à celle de $\langle D^+ \rangle$; M est une matrice décrivant les couplages entre les composantes. Il est intéressant de noter que, si l'on étudie le spectre d'émission sur la transition saturée, les équations (IV-2.2) s'identifient avec les équations de Bloch optiques discutées dans la première partie; la matrice M contient des termes décrivant l'interaction atome laser, l'évolution libre des diverses composantes et leur relaxation; M dépend de la fréquence apparente $\tilde{\omega}_L$ du laser. Dans l'appendice A4, on écrira l'équation (IV-2.2) dans le cas de l'effet Autler Townes optique.

Le théorème de régression quantique permet alors d'écrire (pour $\tau > 0$)

$$\frac{d}{d\tau} \langle \mathcal{D}^+(t+\tau) D^-(t) \rangle = iM \langle \mathcal{D}^+(t+\tau) D^-(t) \rangle \quad (\text{IV-2.3})$$

On peut alors passer de ces équations différentielles à des équations algébriques par une transformation de Fourier-Laplace qui fait apparaître explicitement les conditions initiales $\langle \mathcal{D}^+(t) D^-(t) \rangle$ ($\tau=0$):

$$i(\tilde{\omega} - M(\tilde{\omega}_L)) \mathcal{F} = \langle \mathcal{D}^+(t) D^-(t) \rangle \quad (\text{IV-2.4})$$

avec

$$\mathcal{F} = \int_0^\infty \langle \mathcal{D}^+(t+\tau) D^-(t) \rangle \exp(-i\tilde{\omega}\tau) d\tau \quad (\text{IV-2.5})$$

Or le spectre de fluorescence s'exprime justement à partir de l'une des composantes de $\mathcal{F}$ (voir IV-2.1). Il suffit donc pour l'obtenir de résoudre l'équation (IV-2.4) et on obtient donc un rapport de deux déterminants:

$$S(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L) = \operatorname{Re} \frac{1}{i\pi} \frac{N(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)}{D(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)} \quad (\text{IV-2.6})$$

$D(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)$ est simplement le déterminant de la matrice $(\tilde{\omega} - M(\tilde{\omega}_L))$ qui apparaît dans (IV-2.4) ; $N(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)$ est le déterminant obtenu après substitution d'une colonne de $(\tilde{\omega} - M(\tilde{\omega}_L))$ par la colonne $\langle \mathcal{D}^+(t) D^-(t) \rangle$ apparaissant à droite dans (IV-2.4). Le point le plus important pour la suite de la discussion est que N et D sont des polynômes en $\tilde{\omega}$ et $\tilde{\omega}_L$ et que N/D est donc une fraction rationnelle en $\tilde{\omega}$ et $\tilde{\omega}_L$.

On peut noter que l'expression rationnelle (IV-2.6) du spectre est valable pour toutes les valeurs du rapport ω_1/γ ; dans le cas $\omega_1 \gg \gamma$, on doit retrouver par cette expression le même résultat que par la méthode de l'atome habillé utilisée jusqu'à maintenant ; on se servira de ce résultat plus loin.

Remarque :

La discussion ci-dessus correspond au cas où les populations contribuant au signal ne sont pas couplées au laser ; il est intéressant de voir où nous avons utilisé cette hypothèse.

Les conditions initiales $\langle \mathcal{D}^+(t) D^-(t) \rangle$ qui apparaissent dans (IV-2.4) s'expriment justement en fonction de la population du niveau (ou des niveaux) contribuant au signal (voir appendice A4). Si ces populations sont couplées au laser, il faut pour obtenir leur valeur stationnaire, résoudre une équation pilote ; par conséquent, $\langle \mathcal{D}^+(t) D^-(t) \rangle$ est fonction de $\tilde{\omega}_L$ et s'exprime en général comme une fraction rationnelle de $\tilde{\omega}_L$; $N(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)$, qui dépend de $\langle \mathcal{D}^+(t) D^-(t) \rangle$ (voir discussion de l'équation IV-2.6 ci-dessus), est alors non plus un polynôme en $\tilde{\omega}_L$ mais une fraction rationnelle en $\tilde{\omega}_L$. On peut encore écrire

$$S(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L) = \operatorname{Re} \frac{1}{i\pi} \frac{N'(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)}{D'(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)} \quad (\text{IV-2.6bis})$$

où N' et D' sont deux polynômes, mais D' n'est plus simplement le déterminant de la matrice $(\tilde{\omega} - M(\tilde{\omega}_L))$.

Nous nous limitons dans la suite aux cas où les niveaux contribuant au signal ne sont pas couplés au laser.

IV-2.2 L'expression algébrique du spectre d'émission de la vapeur

Pour un atome de vitesse v , la fréquence laser $\tilde{\omega}_L$ et la fréquence d'émission $\tilde{\omega}$ dans son référentiel propre sont liées à la fréquence laser ω_L

et la fréquence d'émission ω dans le laboratoire par les relations suivantes (voir § 11-2.1)

$$\tilde{\omega}_L = \omega_L + u \quad (\text{IV-2.7})$$

$$\tilde{\omega} = \omega + su \quad (\text{IV-2.8})$$

avec $u = \omega_0 v/c$ et $s = \omega'_0 / \omega_0$ (IV-2.9)

Le spectre d'émission $R(\omega, u)$ d'un atome de vitesse u à la fréquence ω dans le laboratoire s'écrit donc

$$R(\omega, u) = S(\omega + su, \omega_L + u) \quad (\text{IV-2.10})$$

On obtient enfin le spectre d'émission de la vapeur $K(\omega)$ par intégration sur les vitesses

$$K(\omega) = \int du g(u) R(\omega, u) \quad (\text{IV-2.11})$$

avec
$$g(u) = \frac{2N}{\Delta\sqrt{\pi}} \exp(-4u^2/\Delta^2) \quad (\text{IV-2.12})$$

(fonction de distribution des vitesses définie en 11-2.10)

A la limite Doppler ($\omega_1 \ll \Delta$), la largeur Doppler Δ est beaucoup plus grande que les structures de largeur γ ou ω_1 auxquelles on s'intéresse et on peut remplacer $g(u)$ par une constante. Il est bien connu que l'on peut alors calculer l'intégrale (IV-2.11) par la "méthode des résidus". En effet, $R(\omega, u)$ s'écrit d'après (IV-2.6) et (IV-2.10)

$$R(\omega, u) = \text{Re} \frac{1}{i\pi} \frac{P(\omega, u)}{Q(\omega, u)} \quad (\text{IV-2.13})$$

où P et Q sont deux polynômes en ω et en u

$$P(\omega, u) = N(\omega + su, \omega_L + u) \quad (\text{IV-2.14})$$

$$Q(\omega, u) = D(\omega + su, \omega_L + u) \quad (\text{IV-2.15})$$

Si l'on fixe la valeur de ω , $P(\omega, u) / Q(\omega, u)$ est une fraction rationnelle en u que l'on peut décomposer en éléments simples

$$\frac{P(\omega, u)}{Q(\omega, u)} = \sum_{\alpha} \frac{r_{\alpha}}{u - u_{\alpha}} \quad (\text{IV-2.16})$$

où les u_α sont les "poles" de la fraction rationnelle et r_α les "résidus" associés. Les poles u_α sont les zéros du dénominateur

$$Q(\omega, u_\alpha) = 0 \quad (\text{IV-2.17})$$

et les résidus r_α sont donnés par :

$$r_\alpha = \frac{P(\omega, u)}{Q'_u(\omega, u)} \quad (u = u_\alpha) \quad (\text{IV-2.18})$$

(Q'_u est la dérivée partielle de Q par rapport à u). Les u_α et les r_α sont bien sur des nombres complexes et ils dépendent de ω . En reportant la décomposition (IV-2.16) dans l'expression (IV-2.13) du spectre puis dans l'intégrale (IV-2.11) avec $g(u) = 1$, on obtient

$$K(\omega) = \text{Re} \sum_{\alpha} r_\alpha \epsilon_\alpha \quad (\text{IV-2.19})$$

où

$$\epsilon_\alpha = \frac{1}{i\pi} \int \frac{du}{u - u_\alpha} \quad (\text{IV-2.20})$$

ϵ_α est simplement le signe de la partie imaginaire du pole u_α et l'expression (IV-2.19) est donc le résultat habituel de la méthode des résidus.

Il est clair maintenant que l'on peut généraliser ce résultat pour tenir compte de la variation de $g(u)$. En effet, l'intégrale (IV-2.11) s'écrit alors

$$K(\omega) = \text{Re} \sum_{\alpha} r_\alpha G(u_\alpha) \quad (\text{IV-2.21})$$

avec

$$G(u_\alpha) = \frac{1}{i\pi} \int \frac{du g(u)}{u - u_\alpha} \quad (\text{IV-2.22})$$

La fonction G ainsi définie est quelquefois appelée "fonction des plasmas". On en donne quelques propriétés dans l'appendice A4.

On pourrait se demander si l'expression (IV-2.21) est vraiment plus intéressante que la forme initiale (IV-2.11) de l'intégrale sur les vitesses. En particulier, l'intégrale sur u n'est pas supprimée mais simplement reportée dans le calcul de G . L'expression (IV-2.21) présente en fait plusieurs avantages que nous discutons maintenant.

Le premier avantage de (IV-2.21) est un avantage technique, important pour le calcul explicite des spectres. On connaît en effet un développement en série de la fonction G définie en (IV-2.22) et le calcul de G sur ordinateur est donc aussi facile que le calcul de la fonction exponentielle par exemple ; c'est un calcul beaucoup plus facile et beaucoup plus rapide que l'intégration numérique de (IV-2.11) ou le calcul par la méthode graphique qui contient une convolution.

Un deuxième avantage est que cette expression permet d'établir des résultats généraux concernant certaines caractéristiques des spectres. Ainsi dans l'appendice A4, on montre que l'équation (IV-2.21) permet d'obtenir une expression générale pour la hauteur du pic de compensation pour les systèmes à trois niveaux décrits dans le § 11-4.

Un troisième avantage enfin va apparaître clairement dans le prochain chapitre puisqu'on va y démontrer que l'expression algébrique (IV-2.21) est en fait étroitement reliée à la construction graphique de la deuxième partie.

CHAPITRE IV-3

LE LIEN ENTRE LA METHODE ALGEBRIQUE ET LA METHODE GRAPHIQUE

Le but de ce chapitre est de montrer que l'expression algébrique du spectre de vapeur $K(\omega)$ que nous venons d'obtenir (équation IV-2.21) peut s'interpréter par une généralisation dans le plan complexe de la construction graphique développée dans la deuxième partie.

Rappelons d'abord en quoi consiste la méthode graphique :

(i) La première étape de cette méthode est la définition d'un diagramme de fréquence permettant de représenter graphiquement les fréquences d'émission de tous les atomes (Fig IV-3.1)

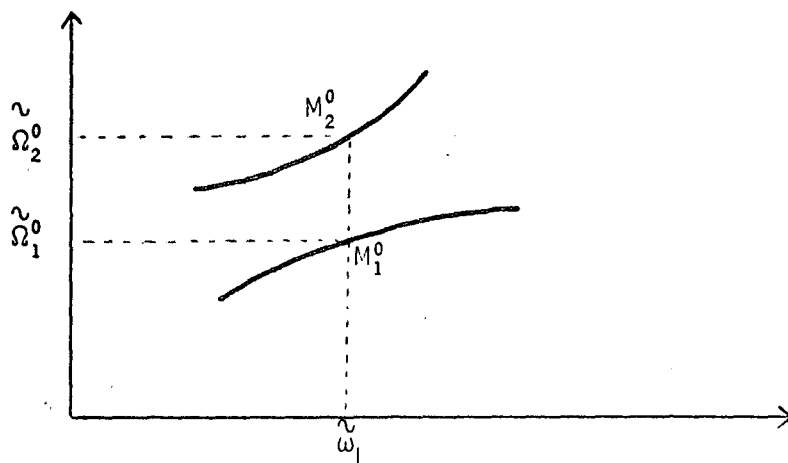


Fig IV-3.1 : Définition du diagramme de fréquence : pour chaque valeur ω_L de la fréquence apparente du laser dans le référentiel de l'atome, on porte en ordonnées les fréquences ω_i^0 émises par l'atome dans ce référentiel.

(ii) Dans une deuxième étape, on détermine par une construction graphique quels sont les atomes émettant à une fréquence donnée (Fig IV-3.2).

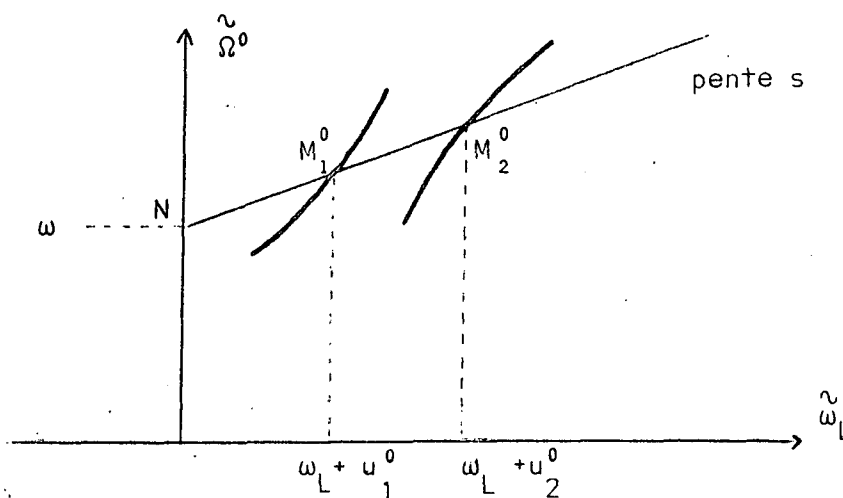


Fig IV-3.2 Construction graphique : les vitesses u_{α}^0 des atomes émettant à la fréquence ω sont données par les points d'intersection du diagramme avec la droite de pente s issue du point N d'abscisse ω_L et d'ordonnée ω .

(iii) Enfin, on détermine quelle est la contribution au signal de chacune des solutions u_{α}^0 de la construction graphique : on obtient ainsi ce que nous appellerons par la suite l'expression graphique du spectre

$$K_0(\omega) = \sum_{\alpha} I_{\alpha}^0 \left| \frac{du_{\alpha}^0}{d\omega} \right| g(u_{\alpha}^0) \quad (\text{IV-3.1})$$

où I_{α}^0 est le poids de la raie d'émission correspondant à un atome de vitesse u_{α}^0 , $\left| \frac{du_{\alpha}^0}{d\omega} \right|$ est le facteur statistique caractérisant l'intervalle $|du_{\alpha}^0|$ sur l'axe des vitesses correspondant à l'émission dans l'intervalle de fréquence $d\omega$ (interprétation graphique du facteur statistique sur la Fig II-2.5, page 136) ; enfin $g(u_{\alpha}^0)$ est la fonction de distribution de vitesses. Rappelons que cette expression ne contient pas les largeurs d'émission et qu'il faut donc tenir compte de ces largeurs par une convolution (§ II-2.2)

Remarque :

Nous avons mis un indice supérieur 0 à toutes les quantités $\tilde{\Omega}_i^0$, u_α^0 , I_α^0 qui apparaissent dans la méthode graphique. Ceci nous permettra de ne pas les confondre avec les quantités $\tilde{\Omega}_i$, u_α , I_α qui apparaissent dans la méthode algébrique

Rappelons maintenant l'expression algébrique obtenue dans le chapitre précédent (équation IV-2.21)

$$K(\omega) = \sum_{\alpha} r_{\alpha} G(u_{\alpha}) \quad (\text{IV-3.2})$$

où les u_{α} et les r_{α} sont les poles et les résidus d'une fraction rationnelle en u , $P(\omega, u)/Q(\omega, u)$. Nous allons d'abord montrer que les nombres complexes u_{α} qui apparaissent dans cette expression algébrique ont exactement la même interprétation que les vitesses u_{α}^0 (réelles bien sûr) qui figurent dans l'expression graphique (IV-3.1). On peut en effet définir des fréquences d'émission complexes décrivant à la fois la position d'une raie (partie réelle de la fréquence complexe) et sa largeur (partie imaginaire). Il est alors possible de construire un diagramme de fréquence complexe en reportant ces fréquences complexes en fonction de la fréquence apparente $\tilde{\omega}_L$ du laser (§ IV-3.1). On montre alors que les poles u_{α} apparaissant dans (IV-3.2) sont obtenus par une généralisation de la construction graphique au plan complexe : ils sont donnés par les intersections du diagramme complexe avec la droite de pente s issue du point d'abscisse ω_L et d'ordonnée ω (§ IV-3.2). Enfin, dans le dernier paragraphe (§ IV-3.3), on transforme le résidu r_{α} pour écrire l'expression algébrique (IV-3.2) sous la forme suivante :

$$K(\omega) = \sum_{\alpha} I_{\alpha} (-du_{\alpha}/d\omega) G(u_{\alpha}) \quad (\text{IV-3.3})$$

Cette expression de $K(\omega)$ est tout à fait similaire à l'expression graphique (IV-3.1). I_{α} est le poids d'émission complexe correspondant à un atome de vitesse u_{α} , $(-du_{\alpha}/d\omega)$ est un facteur statistique complexe et $G(u_{\alpha})$ généralise pour des variables complexes la fonction de distribution des vitesses g .

IV-3.1 Définition du diagramme de fréquence complexe

Pour définir des fréquences complexes, nous revenons à l'expression rationnelle (IV-2.6) du spectre $S(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)$ émis dans son référentiel propre par un atome "voyant" le laser à la fréquence $\tilde{\omega}_L$

$$S(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L) = \text{Re} \frac{1}{i\pi} \frac{N(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)}{D(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)} \quad (\text{IV-3.4})$$

Si l'on fixe $\tilde{\omega}_L$, c'est à dire si l'on fixe la vitesse de l'atome, $N(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)/D(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)$ est une fraction rationnelle en $\tilde{\omega}$ que l'on peut décomposer en éléments simples ; on obtient

$$\frac{N(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)}{D(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)} = \sum_i \frac{I_i}{\tilde{\omega} - \tilde{\Omega}_i} \quad (\text{IV-3.5})$$

où nous avons noté $\tilde{\Omega}_i$ les poles de la fraction rationnelle et I_i les résidus associés. Reportons (IV-3.5) dans (IV-3.4) ; le spectre s'écrit :

$$\begin{aligned} S(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L) &= \frac{1}{\pi} \sum_i \text{Re} \frac{I_i}{i(\tilde{\omega} - \tilde{\Omega}_i)} \\ &= \frac{1}{\pi} \sum_i \frac{(\text{Re } I_i)(\text{Im } \tilde{\Omega}_i) + (\text{Im } I_i)(\tilde{\omega} - \text{Re } \tilde{\Omega}_i)}{(\tilde{\omega} - \text{Re } \tilde{\Omega}_i)^2 + (\text{Im } \tilde{\Omega}_i)^2} \end{aligned} \quad (\text{IV-3.6})$$

(Re et Im signifient "partie réelle" et "partie imaginaire"). On a donc obtenu une décomposition de $S(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)$ en une somme de composantes ; la composante correspondant au pole $\tilde{\Omega}_i$ est formée d'une lorentzienne d'absorption centrée en $\tilde{\omega} = \text{Re } \tilde{\Omega}_i$, de largeur $\text{Im } \tilde{\Omega}_i$ (demi-largeur à mi hauteur), de poids $\text{Re } I_i$ et d'une lorentzienne de dispersion centrée en $\text{Re } \tilde{\Omega}_i$ de largeur $\text{Im } \tilde{\Omega}_i$ elle aussi et de poids $\text{Im } I_i$.

L'expression (IV-3.6) donne ainsi l'interprétation des poles $\tilde{\Omega}_i$ et des résidus I_i introduits ci-dessus : $\tilde{\Omega}_i$ est une "fréquence complexe" contenant à la fois la position des composantes ($\text{Re } \tilde{\Omega}_i$) et leur largeur ($\text{Im } \tilde{\Omega}_i$) ; I_i est une "intensité complexe" contenant le poids de la composante en absorption ($\text{Re } I_i$) et celui de la composante en dispersion ($\text{Im } I_i$).

Nous n'avons fait aucune approximation dans la dérivation de l'expression (IV-3.6) ; celle-ci est donc valable pour toutes les valeurs du rapport ω_1/γ . Lorsque $\omega_1 \gg \gamma$, les différentes composantes sont bien séparées et l'expression (IV-3.6) doit alors s'identifier au résultat obtenu par la méthode de l'atome

habillé ; on doit donc obtenir

$$\operatorname{Re} \tilde{\Omega}_i = \tilde{\Omega}_i^0 \quad \operatorname{Im} \tilde{\Omega}_i = \gamma_i^0/2 \quad (\text{IV-3.7})$$

$$\operatorname{Re} I_i = I_i^0 \quad \operatorname{Im} I_i = 0 \quad (\text{IV-3.8})$$

où $\tilde{\Omega}_i^0$, γ_i^0 et I_i^0 sont la position, la largeur et l'intensité de la composante calculées par l'atome habillé ; $\operatorname{Im} I_i$ est nul puisqu'il n'y a pas de composante en dispersion pour $\omega_1 \gg \gamma$ (plus précisément, $\operatorname{Im} I_i$ varie en γ/ω_1)

Ayant ainsi défini des fréquences complexes, on peut définir maintenant le diagramme de fréquence complexe de la façon suivante : pour chaque valeur $\tilde{\omega}_L$ de la fréquence apparente du laser, on porte en ordonnées les fréquences complexes $\tilde{\Omega}_i$ (voir la définition du diagramme de fréquence réel, Fig IV-3.1)

Revenons maintenant à la définition des $\tilde{\Omega}_i$ (équation IV-3.5) : pour toute valeur de $\tilde{\omega}_L$, les $\tilde{\Omega}_i$ sont les poles de $N(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)/D(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)$ c'est-à-dire les zéros de $D(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)$

$$D(\tilde{\Omega}_i, \tilde{\omega}_L) = 0 \quad (\text{IV-3.9})$$

On en déduit immédiatement l'équation caractéristique du diagramme de fréquence complexe : un point M d'abscisse x et d'ordonnée y appartient au diagramme si et seulement si

$$D(y, x) = 0 \quad (\text{IV-3.10})$$

On aura besoin dans la suite de la valeur de l'intensité complexe I_i qui est aussi le résidu de $N(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)/D(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)$ associé au pole $\tilde{\Omega}_i$

$$I_i = \frac{N(y, x)}{D'_y(y, x)} \quad (y = \tilde{\Omega}_i, x = \tilde{\omega}_L) \quad (\text{IV-3.11})$$

IV-3.2 Généralisation de la construction graphique

Nous démontrons dans ce paragraphe que les u_α qui apparaissent dans l'expression algébrique sont donnés par une construction graphique généralisée

au plan complexe

En effet, pour une valeur de ω donnée, les u_α sont les solutions de l'équation

$$Q(\omega, u_\alpha) = D(\omega + s u_\alpha, \omega_L + u_\alpha) = 0 \quad (\text{IV-3.12})$$

(voir IV-2.15 et IV-2.17). On peut réécrire cette équation sous la forme

$$\begin{aligned} y &= \omega + s u_\alpha \\ x &= \omega_L + u_\alpha \\ D(y, x) &= 0 \end{aligned} \quad (\text{IV-3.13})$$

Les deux premières équations signifient que le point M d'abscisse x et d'ordonnée y est sur la droite de pente s issue du point N d'abscisse ω_L et d'ordonnée ω ; la troisième équation signifie que M est sur le diagramme de fréquence complexe. Le point M est donc obtenu comme intersection de la droite définie ci-dessus avec le diagramme de fréquence complexe, ce qui généralise dans le plan complexe la construction graphique de la Figure IV-3.2. On peut noter que l'abscisse x , l'ordonnée y du point M ainsi que la vitesse u_α correspondante sont des nombres complexes ; en effet ω , ω_L et s sont réels et on peut donc déduire de (IV-3.13) que

$$\text{Im } y = s \text{ Im } u = s \text{ Im } x \quad (\text{IV-3.14})$$

IV-3.3 Interprétation "graphique" de l'expression algébrique

Nous voulons dans ce paragraphe transformer l'expression du résidu

$$r_\alpha = \frac{P(\omega, u)}{Q'_u(\omega, u)} \quad (u = u_\alpha) \quad (\text{IV-3.15})$$

(eq. IV-2.18), ce qui nous permettra de mettre l'expression algébrique sous la forme (IV-3.3) très voisine de la forme de l'expression graphique (IV-3.1)

Dans ce but, nous réécrivons r_α comme produit de deux facteurs :

$$r_{\alpha} = A \quad B \quad (\text{IV-3.16})$$

avec

$$A = \frac{P(\omega, u)}{Q'_{\omega}(\omega, u)} \quad (u = u_{\alpha}) \quad (\text{IV-3.17})$$

$$B = \frac{Q'_{\omega}(\omega, u)}{Q'_u(\omega, u)} \quad (u = u_{\alpha}) \quad (\text{IV-3.18})$$

Interprétons d'abord le premier facteur, A, en écrivant

$$P(\omega, u) = N(y, x) \quad (\text{IV-3.19})$$

$$Q(\omega, u) = D(y, x) \quad (\text{IV-3.20})$$

$$\text{avec} \quad y = \omega + su \quad (\text{IV-3.21})$$

$$x = \omega_L + u \quad (\text{IV-3.22})$$

(voir IV-2.14 et IV-2.15). Comme

$$\partial x / \partial \omega = 0 \quad \text{et} \quad \partial y / \partial \omega = 1 \quad (\text{IV-3.23})$$

on obtient à partir de (IV-3.20)

$$Q'_{\omega}(\omega, u) = D'_y(y, x) \quad (\text{IV-3.24})$$

et finalement

$$A = \frac{N(y, x)}{D'_y(y, x)} \quad (y = \omega + su_{\alpha}, \quad x = \omega_L + u_{\alpha}) \quad (\text{IV-3.25})$$

On reconnaît alors (voir l'équation IV-3.11) l'intensité complexe associée au point M_{α} du diagramme d'abscisse $\omega_L + u_{\alpha}$ et d'ordonnée $\omega + su_{\alpha}$; nous noterons I_{α} cette intensité (IV-3.25 s'écrit ainsi $A = I_{\alpha}$).

On peut maintenant interpréter le deuxième facteur, B, qui apparaît dans (IV-3.16). On remarque que u_{α} est une fonction de ω définie par

$$Q(\omega, u_{\alpha}) = 0 \quad (\text{IV-3.26})$$

Si l'on dérive cette égalité par rapport à ω , on obtient

$$Q'_\omega(\omega, u_\alpha) + \frac{du_\alpha}{d\omega} Q'_u(\omega, u_\alpha) = 0 \quad (\text{IV-3.27})$$

soit

$$B = \frac{Q'_\omega(\omega, u)}{Q'_u(\omega, u)} (u = u_\alpha) = - \frac{du_\alpha}{d\omega} \quad (\text{IV-3.28})$$

En regroupant les résultats obtenus pour A et B, on arrive à

$$r_\alpha = I_\alpha (-du_\alpha/d\omega) \quad (\text{IV-3.29})$$

et par conséquent à

$$K(\omega) = \sum_{\alpha} I_\alpha (-du_\alpha/d\omega) G(u_\alpha) \quad (\text{IV-3.30})$$

Conclusion

Nous venons donc de démontrer que $K(\omega)$ peut s'écrire sous la forme (IV-3.30) qui est tout à fait similaire à l'expression graphique (IV-3.1) : les u_α sont donnés par les points d'intersection M_α du diagramme de fréquence complexe avec la droite de pente s issue du point N d'abscisse ω_L et d'ordonnée ω ; I_α est le poids de la raie associé à ce point M_α (I_α est un nombre complexe décrivant la composante en absorption et la composante en dispersion) ; $(-du_\alpha/d\omega)$ est un facteur statistique complexe et $G(u_\alpha)$ généralise au plan complexe la fonction de distribution des vitesses g .

C O N C L U S I O N

La conclusion essentielle de ce travail est que la méthode de l'atome habillé est très bien adaptée à l'étude des problèmes posés par l'interaction d'un atome avec une onde laser monochromatique et intense. Rappelons en effet les principales caractéristiques de cette méthode.

(i) Elle permet un traitement quantitatif des problèmes, traitement très souvent plus simple que les traitements antérieurs. Par exemple, l'émission de photons de fluorescence est traitée comme une relaxation radiative de l'atome habillé décrite quantitativement par une équation pilote. De même la redistribution collisionnelle est traitée comme une relaxation collisionnelle de l'atome habillé elle aussi décrite par une équation pilote. L'équation pilote permet de calculer les divers signaux de fluorescence tels que l'intensité totale, le spectre ou le signal de corrélations de photons. Enfin, l'effet Doppler, important pour l'étude des spectres de vapeur, peut être traité par des constructions graphiques portant sur le diagramme de fréquence.

(ii) Les résultats obtenus ont le plus souvent une interprétation simple éclairant d'un jour nouveau des effets ayant déjà fait l'objet de nombreux travaux : les fréquences d'émission sont les fréquences de Bohr correspondant à des transitions permises de l'atome habillé, la précession de Rabi apparaît comme un signal de battement quantique entre niveaux habillés, les signaux de corrélation s'interprètent bien en considérant l'émission des photons de fluorescence comme une cascade radiative de l'atome habillé, l'effet des collisions est décrit par des paramètres de type $1/T_1$ et $1/T_2$ dans la base des états propres de l'atome habillé, les structures de largeur γ dans les spectres Autler Townes en vapeur s'expliquent par une compensation de l'effet Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse. De surcroît, la méthode de l'atome habillé suggère l'étude de nouveaux signaux (corrélations temporelles entre photons filtrés, distribution $q(m,T)$ du nombre m de photons détectés pendant un temps T donné) ou de nouvelles situations (structure nouvelle du spectre Autler Townes lorsque $\omega_1 \gg \Delta$ où $\omega_1 \sim \Delta$ et surtout utilisation d'un effet Zeeman pour améliorer les caractéristiques de la compensation).

(iii) La comparaison avec la méthode des équations de Bloch optiques montre enfin que la méthode de l'atome habillé est non seulement beaucoup mieux adaptée aux champs intenses mais qu'elle a de plus un domaine de validité plus étendu. Il existe en effet des situations telles que l'étude des collisions hors du régime d'impact où l'on ne peut plus écrire d'équations de Bloch optiques alors que la méthode de l'atome habillé demeure applicable.

Nous avons vu que la méthode de l'atome habillé nous avait permis de prévoir des effets originaux. Nous avons pu mettre en évidence expérimentalement trois de ces effets, la compensation de l'effet Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse, les nouvelles résonances apparaissant dans la spectroscopie d'absorption saturée des systèmes à trois niveaux et les corrélations temporelles entre photons émis dans les deux bandes latérales du triplet de fluorescence. Nous avons montré en particulier que le phénomène de compensation de l'effet Doppler permet de réaliser un milieu atomique présentant des caractéristiques inhabituelles, ce qui pourrait donner lieu à diverses applications. L'une d'entre elles vient d'être réalisée ("unidirectional light by light switching" [Bf 3]).

Nous pensons donc avoir mis en évidence les grandes possibilités de la méthode de l'atome habillé. Signalons une application récente de cette méthode à l'étude des résonances entre niveaux non peuplés en optique non linéaire [Dr]. On peut donner plusieurs exemples de domaines de recherche dans lesquels il semble possible d'obtenir de nouveaux résultats intéressants:

- l'interaction d'un atome avec une onde laser intense non monochromatique ou non stationnaire (champ monomode fluctuant [Ag], champ bimode, onde stationnaire, impulsions de champ....)
- les effets collectifs tels que la fluorescence de résonance collective [Ai]
- les effets d'une irradiation laser sur les variables externes de l'atome, par exemple le piégeage ou le refroidissement radiatifs [Dq].

APPENDICES

=====

A P P E N D I C E A1

CALCUL DE LA DISTRIBUTION $q(m, T)$. LIEN AVEC LA CASCADE RADIATIVE DE L'ATOME HABILÉ

Cet appendice est consacré à l'étude de la distribution $q(m, T)$ du nombre m de photons détectés pendant un temps T .

On appellera $q_1(m, T)$ la distribution du nombre de photons émis.

Dans le § A1.1, on montre comment on peut étudier $q(m, T)$ avec les techniques utilisées dans le chapitre 1-3 pour les autres signaux : expression à partir de fonctions de corrélation du dipole atomique puis calcul de ces fonctions de corrélation grâce au théorème de régression quantique. Ceci nous permet en particulier de calculer la valeur moyenne m et la dispersion Δm de la distribution et d'obtenir également la relation entre $q(m, T)$ et $q_1(m, T)$.

Nous démontrons ensuite (§ A1.2) le résultat énoncé dans le § 1-3.6 (page 69) à savoir : $q_1(m, T)$ est égal à la probabilité que l'atome habillé soit dans la multiplicité $\mathcal{E}_{n-m}$ à l'instant T ($q_1(m, T) = \text{Tr } \sigma_{n-m}(T)$) si l'on suppose que l'atome habillé est dans la multiplicité $\mathcal{E}_n$ à l'instant 0.

Le troisième paragraphe (§ A1.3) est consacré à l'étude de la statistique du nombre de photons détectés dans une raie du triplet.

On montre enfin (§ A1.4) que, lorsque le nombre moyen de photons détectés est grand, la distribution $q(m, T)$ tend vers une gaussienne.

A1.1 - Etude de $q(m, T)$ à partir des fonctions de corrélation du dipole atomique

Les moments factoriels $A(\ell, T)$

Il nous faut d'abord introduire ce que l'on appelle les moments factoriels $A(\ell, T)$ de la distribution $q(m, T)$

$$A(\ell, T) = \frac{\overline{m!}}{\ell!(m-\ell)!} = \frac{1}{\ell!} \overline{[m(m-1)\dots(m-\ell+1)]} \quad (A1.1)$$

où la notation $\overline{f(m)}$ représente la valeur moyenne de $f(m)$

$$\overline{f(m)} = \sum_m f(m) q(m, T) \quad (A1.2)$$

Par exemple, les premiers moments factoriels sont

$$A(0, T) = 1 \quad (A1.3)$$

$$A(1, T) = \overline{m} \quad (A1.4)$$

$$A(2, T) = \overline{m(m-1)}/2 \quad (A1.5)$$

Si on sait calculer les moments factoriels, on pourra en déduire la distribution $q(m, T)$. On peut en effet inverser la relation (A1.1) pour écrire :

$$q(m, T) = \sum_{\ell} \frac{\ell!}{m!(\ell-m)!} (-1)^{\ell-m} A(\ell, T) \quad (A1.6)$$

Expression des moments factoriels à partir de fonctions de corrélation du dipole atomique

Dans le § 1-3.2, nous avons montré comment les signaux de fluorescence $I(t)$, $C(t+\tau, t)$ étaient reliés à des fonctions de corrélation du dipole atomique. On peut obtenir un tel résultat aussi pour les moments factoriels $A(\ell, T)$ (en utilisant ici aussi des résultats établis par Glauber [Dg 1])

$$A(\ell, T) = \int_{0 < t_1 < \dots < t_{\ell} < T} C_{\ell}(t_{\ell}, \dots, t_1) dt_1 \dots dt_{\ell} \quad (A1.7)$$

avec

$$C_{\ell}(t_{\ell} \dots t_1) = (K\zeta)^{\ell} < D^{+}(t_1) \dots D^{+}(t_{\ell}) D^{-}(t_{\ell}) \dots D^{-}(t_1) \quad (A1.8)$$

(K est le facteur tel que $\Gamma = Kd^2$ et ζ le "taux de détection" défini par l'équation 1-3.24 page 47). La quantité C_{ℓ} s'identifie, pour $\ell = 1$ à l'intensité

l de la fluorescence ; pour $\ell=2$, au signal de corrélation de photons $C(t+\tau, t)$ (voir les équations 1-3.5 et 1.3.6 page 44). L'interprétation de C_ℓ est d'ailleurs , pour ℓ quelconque, celle d'une fonction de corrélation à ℓ temps : $[C_\ell(t_\ell, \dots, t_1) dt_1 \dots dt_\ell]$ est la probabilité de détecter un premier photon entre t_1 et $t_1 + dt_1$, un second entre t_2 et $t_2 + dt_2$, un ℓ -ième entre t_ℓ et $t_\ell + dt_\ell$.

Utilisation du théorème de régression quantique

On calcule la fonction de corrélation à ℓ temps C_ℓ de la même façon que l'on a calculé la fonction de corrélation à deux temps $C(t+\tau, t)$ dans le § 1-3.5 : le théorème de régression quantique permet en effet d'écrire (pour $t_\ell > t_{\ell-1}$ ce qui est le cas dans l'intégrale A1.7)

$$C_\ell(t_\ell, \dots, t_1) = J(t_\ell - t_{\ell-1}) C_{\ell-1}(t_{\ell-1}, \dots, t_1) \quad (A1.9)$$

avec $J(\tau) = \Gamma \zeta \pi(e, \tau/g) \quad (A1.10)$

(voir 1.3.87 et 1.3.88 page 60). On en déduit par récurrence

$$C_\ell(t_\ell, \dots, t_1) = J(t_\ell - t_{\ell-1}) \dots J(t_2 - t_1) I(t_1) \quad (A1.11)$$

(puisque $C_1(t_1)$ est identique à $I(t_1)$). Nous nous intéressons seulement au régime stationnaire et nous prendrons donc dans (A1.11) la valeur stationnaire de $I(C_\ell(t_\ell, \dots, t_1))$ dépend uniquement des différences $(t_i - t_j)$. On obtient donc finalement les moments factoriels

$$A(\ell, T) = \int_0^T \int_0^{t_1} \dots \int_0^{t_{\ell-1}} J(t_\ell - t_{\ell-1}) \dots J(t_2 - t_1) I(t_1) dt_1 \dots dt_\ell \quad (A1.12)$$

Plus loin, nous calculerons la distribution $q(m, T)$ à partir de l'expression A1.12 (par transformation de Laplace). Mais nous pouvons immédiatement calculer la valeur moyenne et la dispersion de cette distribution.

Valeur moyenne et dispersion de la distribution

En effet, d'après (A1.4) , (A1.5) et (A1.12) :

$$\overline{m} = A(1, T) = IT \quad (A1.13)$$

$$\overline{m(m-1)} = 2A(2, T) = 2I \int_0^T \int_0^{t_2} J(t_2 - t_1) dt_1 dt_2 \quad (A1.14)$$

La relation (A1.13) était attendue puisque $\bar{l}$ est par définition le nombre moyen de photons détectés par unité de temps. La relation (A1.14) permet de calculer la dispersion Δm

$$(\Delta m)^2 = \overline{m^2} - \bar{m}^2 = \overline{m(m-1)} + \bar{m} - \bar{m}^2 \quad (A1.15)$$

On obtient ainsi

$$(\Delta m)^2 = \bar{m}(1+2a) \quad (A1.16)$$

$$\text{où } a = \int_0^\infty d\tau (J(\tau) - 1) = \zeta a_1 \quad (A1.17)$$

$$\text{avec } a_1 = \int_0^\infty \Gamma d\tau (\pi(e, \tau/g) - \pi_e(\infty)) \quad (A1.18)$$

Relation entre $q(m, T)$ et $q_1(m, T)$

Si on fait $\zeta = 1$ dans les expressions ci-dessus, on obtient les résultats relatifs à la distribution q_1 du nombre de photons émis.

On voit d'après (A1.7) et (A1.8) qu'il existe la relation suivante entre les moments factoriels A et A_1 associés aux distributions q et q_1 :

$$A(\ell, T) = \zeta^\ell A_1(\ell, T) \quad (A1.19)$$

Or on peut exprimer la distribution q en fonction des moments A (éq. A1.6) et A_1 en fonction de q_1 (éq. A1.1 avec la distribution q_1) ; on peut donc déduire de (A1.19) une relation entre q et q_1 . Le calcul montre que cette relation s'écrit :

$$q(m, T) = \sum_{m'} p(m, m') q_1(m+m', T) \quad (A1.20)$$

avec

$$p(m, m') = \zeta^m (1-\zeta)^{m'} (m+m')! / (m! m'!) \quad (A1.21)$$

qui n'est autre que la relation 13.112 dont nous avons déjà donné l'interprétation (page 69)

Calcul de q par transformation de Laplace

Les transformées de Laplace $\tilde{A}(\ell, p)$ des moments $A(\ell, T)$, définies par

$$\tilde{A}(\ell, p) = \int_0^\infty A(\ell, T) \exp(-pT) dT \quad (A1.22)$$

ont une expression simple ; en effet, on démontre que (A1.12) s'écrit :

$$\tilde{A}(\ell, p) = [\tilde{J}(p)]^{\ell-1} 1/p^2 \quad (A1.23)$$

où $\tilde{J}(p)$ est bien sur la transformée de Laplace de $J(\tau)$ (A1.23 comme A1.12 est valable pour $\ell \geq 1$ mais pas pour $\ell = 0$). On en déduit l'expression des transformées de Laplace $\tilde{q}(m, p)$ de $q(m, T)$; en effet, (A1.6) s'écrit

$$\tilde{q}(m, p) = \sum_{\ell} \frac{\ell!}{m!(\ell-m)!} (-1)^{\ell-m} \tilde{A}(\ell, p) \quad (A1.24)$$

La somme fait intervenir seulement les valeurs de ℓ supérieures à m ; pour $m \geq 1$, on peut donc remplacer dans (A1.24) $\tilde{A}(\ell, p)$ par son expression (A1.23) ; en effectuant la sommation, on obtient :

$$\tilde{q}(m, p) = \frac{(\tilde{J}(p))^{m-1}}{(1+\tilde{J}(p))^{m+1}} \frac{1}{p^2} \quad (A1.25)$$

Nous utiliserons cette expression plus loin, pour démontrer la relation entre la distribution du nombre de photons émis et la cascade radiative de l'atome habillé (§ A1.2).

Remarque :

L'expression (A1.25) n'est pas valable pour $m=0$; on peut toutefois obtenir très simplement $q(0, T)$ par la relation

$$q(0, T) + \sum_{m>0} q(m, T) = 1 \quad (A1.26)$$

A1.2 Lien entre q_1 et la cascade radiative de l'atome habillé

La cascade radiative de l'atome habillé est décrite par les équations 1-2.6 (page 29) :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt} \sigma_n &= -i [H_{AL}, \sigma_n] \\ &- \frac{K}{2} (D^+ D^- \sigma_n + \sigma_n D^+ D^-) \\ &+ K D^- \sigma_{n+1} D^+ \end{aligned} \quad (A1.27)$$

où σ_n est la matrice densité de l'atome habillé restreinte à la multiplicité $\mathcal{E}_n$ (matrice de dimension 2). La première ligne décrit la précession de Rabi, la deuxième l'amortissement par émission spontanée de σ_n et la troisième le transfert par émission spontanée de $\mathcal{E}_{n+1}$ vers $\mathcal{E}_n$. On en déduit l'équation d'évolution de la trace de σ_n qui est aussi la population totale de $\mathcal{E}_n$:

$$\frac{d}{dt} \text{Tr } \sigma_n = -K \text{Tr } D^+ D^- \sigma_n + K \text{Tr } D^+ D^- \sigma_{n+1} \quad (\text{A1.28})$$

$$= -\Gamma \pi_{e,n} + \Gamma \pi_{e,n+1} \quad (\text{A1.29})$$

(en effet $K D^+ D^- = K d^2 |e\rangle \langle g| g\rangle \langle e| = \Gamma |e\rangle \langle e|$). La population de $\mathcal{E}_n$ diminue à cause des transitions de $\mathcal{E}_n$ vers $\mathcal{E}_{n-1}$ (nombre $\Gamma \pi_{e,n}$) et augmente à cause des transitions de $\mathcal{E}_{n+1}$ vers $\mathcal{E}_n$ (nombre $\Gamma \pi_{e,n+1}$) (voir la Fig. 1.2.1 page 30).

On peut démontrer que les équations (A1.27) s'écrivent sous la forme intégrale

$$\sigma_n(t) = \int_{-\infty}^t d\tau \mu(\tau) \Gamma \pi_{e,n+1}(t-\tau) \quad (\text{A1.30})$$

où $\mu(\tau)$ est la matrice densité dans la multiplicité $\mathcal{E}_n$ à l'instant τ lorsque l'état initial à l'instant 0 est $|g, n+1\rangle \langle g, n+1|$. Cette forme intégrale s'interprète très bien : $\Gamma \pi_{e,n+1}(t-\tau)$ est le nombre de transitions de $|e, n+1\rangle$ vers $|g, n+1\rangle$ à l'instant $t-\tau$; $\mu(\tau)$ est le résultat de l'évolution depuis $t-\tau$ (où l'état projeté est $|g, n+1\rangle$) jusqu'à t . On remarque que, par la définition de $\mu(\tau)$, on a

$$\langle e, n | \mu(\tau) | e, n \rangle = \pi(e, n, \tau / g, n+1) \quad (\text{A1.31})$$

(population de $|e, n\rangle$ à l'instant τ lorsque l'atome habillé est dans l'état $|g, n+1\rangle$ à l'instant 0). On déduit donc de (A1.30) que

$$\pi_{e,n}(t) = \int_{-\infty}^t d\tau K(\tau) \pi_{e,n+1}(t-\tau) \quad (\text{A1.32})$$

$$\text{où } K(\tau) = \Gamma \pi(e, n, \tau / g, n+1) \quad (\text{A1.33})$$

$K(\tau)$ est la probabilité que le premier photon soit émis à l'instant τ lorsque l'atome est initialement dans $|g, n+1\rangle$ (il ne faut pas confondre $K(\tau)$ avec $J(\tau)$; nous revenons plus loin sur cette discussion)

Nous pouvons maintenant résoudre les équations de la cascade en supposant que l'atome habillé est à l'instant 0 dans la multiplicité n

$$\sigma_{n'}(0) = 0 \quad \text{si } n' \neq n \quad (\text{A1.34})$$

(nous supposons de plus que $\sigma_n(0)$ est la matrice densité restreinte correspondant à l'état stationnaire de l'atome habillé ; voir § 1-2.5). En effet, par transformation de Laplace, (A1.32) devient

$$\tilde{\pi}_{e,n-m}(p) = \tilde{K}(p) \tilde{\pi}_{e,n-m+1}(p) \quad (\text{A1.35})$$

$$= (\tilde{K}(p))^m \tilde{\pi}_{e,n}(p) \quad (\text{A1.36})$$

(A1.36 est obtenu à partir de A1.35 par récurrence). La sommation sur m donne la population totale dans le niveau e

$$\tilde{\pi}_e(p) = \sum_m \tilde{\pi}_{e,n-m}(p) = \frac{1}{1-\tilde{K}(p)} \tilde{\pi}_{e,n}(p) \quad (\text{A1.37})$$

$$\text{soit} \quad \tilde{\pi}_{e,n}(p) = (1-\tilde{K}(p)) \tilde{\pi}_e(p) \quad (\text{A1.38})$$

$$\text{et} \quad \tilde{\pi}_{e,n-m}(p) = (\tilde{K}(p))^m (1-\tilde{K}(p)) \tilde{\pi}_e(p) \quad (\text{A1.39})$$

Pour calculer $\tilde{\pi}_e(p)$, on résout l'équation pilote réduite (§ 1.2.4) (autrement dit, on n'a plus besoin des équations décrivant la cascade). Comme nous avons supposé que la matrice densité $\sigma_n(0)$ correspondait à l'état stationnaire, on obtient simplement

$$\pi_e(t) = \pi_e(\infty) \quad (\text{A1.40})$$

$$\tilde{\pi}_e(p) = \pi_e(\infty)/p \quad (\text{A1.41})$$

$$\tilde{\pi}_{e,n-m}(p) = (\tilde{K}(p))^m (1-\tilde{K}(p)) \pi_e(\infty)/p \quad (\text{A1.42})$$

L'équation (A1.29) devient par transformation de Laplace

$$\text{Tr} \tilde{\sigma}_{n-m}(p) = \frac{\Gamma}{p} (\tilde{\pi}_{e,n-m+1}(p) - \tilde{\pi}_{e,n-m}(p)) \quad (\text{A1.43})$$

$$= (\tilde{K}(p))^{m-1} (1-\tilde{K}(p))^2 \Gamma/p^2 \quad (\text{A1.44})$$

(d'après A1.42 ; on a utilisé $l = \Gamma\pi_e(\infty)$). En comparant (A1.44) et (A1.25) , on voit que l'on aura démontré

$$\text{Tr } \tilde{\sigma}_{n-m}(p) = \tilde{q}(m,p) \quad (\text{A1.45})$$

(autrement dit $\text{Tr } \tilde{\sigma}_{n-m}(t) = q(m,t)$, ce qui était le but de ce paragraphe) si il existe entre $\tilde{J}(p)$ et $\tilde{K}(p)$ la relation

$$\tilde{K}(p) = \frac{\tilde{J}(p)}{1 + \tilde{J}(p)} \quad (\text{A1.46})$$

Or cette relation est effectivement vérifiée ; en effet , si nous résolvons les équations de la cascade avec la condition initiale

$$\sigma_{n'}(0) = 0 \quad \text{si } n' \neq n \quad (\text{A1.47})$$

$$\sigma_n(0) = |g, n+1\rangle \langle g, n+1| \quad (\text{A1.48})$$

alors on obtiendra $\tilde{J}(p)$ et $\tilde{K}(p)$ par les relations

$$\tilde{K}(p) = \Gamma \tilde{\pi}_{e,n}(p) \quad (\text{A1.49})$$

et

$$\tilde{J}(p) = \Gamma \tilde{\pi}_e(p) \quad (\text{A1.50})$$

et la relation (A1.37) s'écrit donc

$$\tilde{J}(p) = \frac{\tilde{K}(p)}{1 - \tilde{K}(p)} \quad (\text{A1.51})$$

ce qui est équivalent à (A1.46)

Nous avons donc démontré la relation entre la cascade radiative de l'atome habillé et la statistique du nombre de photons émis (rappelons que dans tout ce paragraphe, nous supposons $\zeta = 1$) . La relation (A1.45) n'est bien sur pas vérifiée si ζ est différent de 1 ; notons toutefois que les relations (A1.46) et (A1.51) restent vérifiées, ce qui a une interprétation très simple. Réécrivons en effet (A1.51) sous la forme :

$$\tilde{J}(p) = \sum_{m \geq 1} \tilde{L}_m(p) \quad (A1.52)$$

avec $\tilde{L}_m(p) = (\tilde{K}(p))^m \quad (A1.53)$

Supposons qu'un photon soit détecté à l'instant 0 ; $L_1(t)$ ($= K(t)$ d'après A1.53) est la probabilité que le prochain photon soit détecté à l'instant t . De plus, d'après (A1.53)

$$L_m(t) = \int_0^t K(\tau) L_{m-1}(t-\tau) d\tau \quad (A1.54)$$

Ceci nous permet d'interpréter $L_2(t)$ comme la probabilité que le deuxième photon soit détecté à l'instant t et, par récurrence, $L_m(t)$ comme la probabilité que le m -ième photon soit détecté à l'instant t . La relation (A1-52) signifie donc simplement que $J(t)$ est la probabilité qu'un photon soit détecté, quelque soit son ordre d'émission (voir la discussion page 61).

A1.3. Statistique du nombre de photons émis dans une raie du triplet

On peut étudier la distribution $q(m, T)$ du nombre de photons détectés derrière un filtre sélectionnant une des raies du triplet de fluorescence (voir la discussion pages 42 et 43) . Par le même raisonnement que dans le § 1-3.2 , on peut montrer que les moments factoriels $A(\ell, T)$ correspondant à cette distribution s'écrivent :

$$A(\ell, T) = \int_0^T \langle t_1 < \dots < t_\ell < T \rangle C_\ell(t_\ell, \dots, t_1) D t_1 \dots dt_\ell \quad (A1.55)$$

avec $C_\ell(t_\ell, \dots, t_1) = (K_\ell)^\ell \langle D_\alpha^+(t_1) \dots D_\alpha^+(t_\ell) D_\alpha^-(t_\ell) \dots D_\alpha^-(t_1) \rangle \quad (A1.56)$

où D_α est la composante du dipole sélectionnée par le filtre (fréquence $\omega_L + \alpha\Omega$). On comparera ce résultat, d'une part avec les expressions (1.3.14) et (1.3.15) de l'intensité émise dans une raie ou de corrélations entre photons filtrés (page 46) d'autre part avec l'expression (A1.7) des moments factoriels sans sélection spectrale.

On peut calculer C_ℓ de la même façon que l'on a calculé les signaux de corrélation entre photons filtrés dans le § 1.3.5. On obtient ainsi,

$$Cl(t_l, \dots, t_1) = J_\alpha(t_l - t_{l-1}) C_{l-1}(t_{l-1}, \dots, t_1) \quad (A1.57)$$

où $J_\alpha(\tau)$ est la probabilité de détection d'un photon $\omega_L + \alpha\Omega$ à l'instant τ sachant qu'un photon $\omega_L + \alpha\Omega$ a été détecté à l'instant 0 :

$$\alpha = 1 \quad J_\alpha(\tau) = \zeta \Gamma_{2,1} \pi(1, \tau/2) \quad (A1.58)$$

$$\alpha = -1 \quad J_\alpha(\tau) = \zeta \Gamma_{1,2} \pi(2, \tau/1) \quad (A1.59)$$

$$\alpha = 0 \quad J_\alpha(\tau) = \zeta \Gamma_{1,1} \quad (A1.60)$$

(voir les équations 1-3.99 et 1-3.110). On déduit de (A1.57) l'expression des moments factoriels

$$A(l, T) = \int_{0 < t_1 < \dots < t_l < T} J_\alpha(t_l - t_{l-1}) \dots J_\alpha(t_2 - t_1) I_\alpha(t_1) dt_1 \dots dt_l \quad (A1.61)$$

A partir de cette expression (identique à l'expression A1.12 des moments factoriels sans sélection spectrale), on peut calculer valeur moyenne et dispersion de la distribution (résultats donnés dans les équations 1.3.122 à 1.3.125 page 73) et obtenir par transformation de Laplace

$$\tilde{q}(m, p) = \frac{\tilde{(J_\alpha(p))}^{m-1}}{(1 + \tilde{J_\alpha(p)})^{m+1}} \frac{I_\alpha}{p^2} \quad (A1.62)$$

(à comparer avec l'équation A1.25)

Si l'on fait $\zeta=1$ dans les expressions ci-dessus, on obtient les résultats relatifs à la distribution q_1 du nombre de photons émis : remarquons que la relation entre q et q_1 est la même qu'en l'absence de sélection spectrale des photons (voir éq. A1.20 et A1.21)

A1.4 Expression asymptotique de la distribution $q(m, T)$

Nous démontrons dans ce paragraphe que la distribution $q(m, T)$ tend vers une gaussienne lorsque le nombre m de photons détectés devient grand. Dans ce but, nous partons de l'expression

$$\tilde{q}(m, p) = \tilde{(K(p))}^{m-1} \tilde{q}(1, p) \quad (A1.63)$$

(déduite de A1.44 et A1.45). En revenant à la variable T , on peut transformer (A1.63) en :

$$q(m, T) = \int \delta(T - (\tau_1 + \dots + \tau_m)) q(1, \tau_1) K(\tau_2) \dots K(\tau_m) d\tau_1 \dots d\tau_m \quad (A1.64)$$

Cette expression signifie que $q(m, T)$ est la fonction de distribution de la variable

$$T = \tau_1 + \tau_2 + \dots + \tau_m \quad (A1.65)$$

si l'on suppose que $q(1, \tau)$ est la fonction de distribution de τ_1 et $K(\tau)$ la fonction de distribution de $\tau_2, \dots, \tau_m$. On peut d'abord en déduire la valeur moyenne $\bar{T}$ et la dispersion ΔT de la distribution $q(m, T)$

$$\bar{T} = \bar{\tau}_1 + \bar{\tau}_2 + \dots + \bar{\tau}_m \quad (A1.66)$$

$$= \bar{\tau}_1 + (m-1) \bar{\tau}_K \quad (A1.67)$$

$$(\Delta T)^2 = (\Delta\tau_1)^2 + (\Delta\tau_2)^2 + \dots + (\Delta\tau_m)^2 \quad (A1.68)$$

$$= (\Delta\tau_1)^2 + (m-1) (\Delta\tau_K)^2 \quad (A1.69)$$

($\bar{\tau}_1, \bar{\tau}_K, \Delta\tau_1$ et $\Delta\tau_K$ sont les valeurs moyennes et dispersions des distributions $q(1, \tau)$ et $K(\tau)$). Pour m grand, on peut en déduire un résultat encore plus intéressant en appliquant le "théorème de la limite centrale" : T est la somme d'un grand nombre de variables statistiquement indépendantes les unes des autres ; sa distribution est donc une distribution gaussienne

$$q(m, T) \sim \exp \left[-(T - \bar{T})^2 / 2(\Delta T)^2 \right] \quad (A1.70)$$

("le théorème de la limite centrale" n'est en fait applicable que sous certaines conditions, mais celles ci sont ici vérifiées).

Dans le raisonnement ci-dessus, nous avons fixé la valeur de m et considéré $q(m, T)$ comme une fonction de T . Nous pouvons maintenant revenir à notre problème initial en fixant T et en considérant $q(m, T)$ comme la distribution du nombre m de photons détectés pendant ce temps T . Nous faisons donc apparaître la dépendance en m dans (A1.70)

$$q(m, T) \sim \exp \left[-(T - m\bar{\tau}_K)^2 / 2m(\Delta\tau_K)^2 \right] \quad (A1.71)$$

(comme m est grand, nous avons écrit $\bar{T} \sim m\bar{\tau}_K$ et $(\Delta T)^2 \sim m(\Delta\tau_K)^2$; voir A1.67 et A1.69). On écrit finalement :

$$q(m,T) \sim \exp \left[-(m-\bar{m})^2 / 2(\Delta m)^2 \right] \quad (A1.72)$$

avec $\bar{m} = T/\overline{\tau_K}$ (A1.73)

et $(\Delta m)^2 = \bar{m} (\Delta \tau_K / \overline{\tau_K})^2$ (A1.74)

(dans A1.71 nous avons remplacé au dénominateur m par $\bar{m}$ en utilisant le fait que la dispersion relative $\Delta m / \bar{m}$ des valeurs de m est très petite devant 1). Nous avons donc retrouvé d'une façon différente $\bar{m}$ et Δm (expressions A1.13 et A1.16 ; on peut en effet vérifier les identités $1 = 1/\overline{\tau_K}$ et $(1+2a) = (\Delta \tau_K / \overline{\tau_K})^2$). Mais on a de plus démontré que la distribution $q(m,T)$ tendait vers une gaussienne pour un grand nombre de photons détectés.

A P P E N D I C E A2

APPENDICE RELATIF A LA METHODE GRAPHIQUE

Les trois paragraphes de cet appendice sont consacrés à la démonstration des trois résultats suivants que nous avons énoncés dans la deuxième partie :

- Il existe entre l'état propre $|i, n\rangle$ de l'atome habillé et la pente p du diagramme de fréquence au point correspondant la relation (II-3.7 page 145)

$$|\langle i, n | a, n+1 \rangle|^2 = 1-p \quad (\text{A 2-1})$$

- Dans l'hypothèse $\omega_1 \ll \Delta$, si on observe le trou Autler Townes vers l'avant, alors le spectre vers l'arrière ne présente aucune structure de largeur inférieure à la largeur Doppler (page 148)

- Dans l'hypothèse $\omega_1 \gg \Delta$, la largeur L d'une composante du spectre est, pour une observation sous un angle θ ,

$$L = \Delta (p^2 + s^2 - 2ps \cos \theta)^{1/2} \quad (\text{A 2.2})$$

(remarque de la page 170).

A 1.1 Relation entre les états propres de l'atome habillé et la pente p du diagramme

Revenons au calcul des fréquences d'émission dans le cas de l'effet Autler Townes (Fig A2.1)

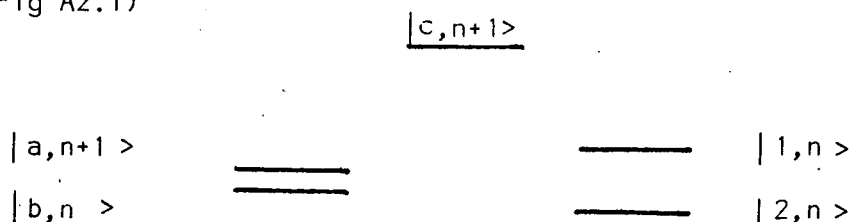


Fig A2.1

Les fréquences d'émission $\tilde{\Omega}_i$ sont les fréquences des transitions $|c, n+1\rangle \rightarrow |i, n\rangle$

$$\tilde{\Omega}_i = E_{c, n+1} - E_{i, n} \quad (\text{A2.3})$$

On les calcule en diagonalisant l'hamiltonien H de l'atome habillé dans la multiplicité $|a, n+1\rangle$, $|b, n\rangle$

$$H = \begin{pmatrix} 0 & \omega_1/2 \\ \omega_1/2 & \omega_0 - \tilde{\omega}_L \end{pmatrix} \quad (\text{A2.4})$$

(on a repéré les énergies par rapport à celle de $|a, n+1\rangle$). En effet, E_{in} et $|i, n\rangle$ sont respectivement les valeurs propres et les vecteurs propres de H . Autrement dit, d'après la relation (A2.3), $\tilde{\Omega}_i$ et $|i, n\rangle$ sont les valeurs propres et vecteurs propres de l'opérateur

$$A = \omega_0' - H = \begin{pmatrix} \omega_0' & -\omega_1/2 \\ -\omega_1/2 & \omega_0' + \tilde{\omega}_L - \omega_0 \end{pmatrix} \quad (\text{A2.5})$$

Il est alors bien connu que la dérivée de $\tilde{\Omega}_i$ par rapport au paramètre $\tilde{\omega}_L$ est donnée par

$$\frac{d\tilde{\Omega}_i}{d\tilde{\omega}_L} = \langle i, n | \frac{dA}{d\tilde{\omega}_L} | i, n \rangle \quad (\text{A2.6})$$

(théorème de Hellman-Feynman essentiellement équivalent au calcul des perturbations au premier ordre ; voir par exemple [Da 3]). Or d'après (A2.5)

$$dA/d\tilde{\omega}_L = |b, n\rangle \langle b, n| \quad (\text{A2.7})$$

et par conséquent

$$\tilde{\Omega}_i / d\tilde{\omega}_L = |\langle i, n | b, n \rangle|^2 \quad (\text{A2.8})$$

La dérivée ci-dessus n'est rien d'autre que la pente du diagramme, au point d'abscisse $\tilde{\omega}_L$ et d'ordonnée $\tilde{\Omega}_i$. D'autre part, d'après la relation de fermeture

$$|\langle i, n | a, n+1 \rangle|^2 = 1 - |\langle i, n | b, n \rangle|^2 \quad (\text{A2.9})$$

On obtient finalement la relation :

$$| \langle i, n | a, n+1 \rangle |^2 = 1 - p \quad (A2.10)$$

que l'on voulait démontrer.

Lorsque deux sous niveaux b_+ et b_- de b sont couplés à a par le laser (système à trois sous niveaux étudié dans le § 11-4), les $\tilde{\Omega}_i$ et $| i, n \rangle$ sont les valeurs propres et vecteurs propres de

$$A = \omega_0' - H = \begin{pmatrix} \omega_0' & -\omega_1/2 & -\omega_1/2 \\ -\omega_1/2 & \omega_0' - \delta + \tilde{\omega}_L - \omega_0 & 0 \\ -\omega_1/2 & 0 & \omega_0' + \delta + \tilde{\omega}_L - \omega_0 \end{pmatrix} \quad (A2.11)$$

(voir l'expression 11-4.6 de H page 164). On a donc :

$$dA/d\tilde{\omega}_L = |b_+, n\rangle \langle b_+, n| + |b_-, n\rangle \langle b_-, n| \quad (A2.12)$$

et

$$\begin{aligned} p &= d\tilde{\Omega}_i / d\tilde{\omega}_L \\ &= |\langle i, n | b_+, n \rangle|^2 + |\langle i, n | b_-, n \rangle|^2 \\ &= 1 - |\langle i, n | a, n+1 \rangle|^2 \end{aligned} \quad (A2.13)$$

La relation (A2.10) est donc encore vérifiée.

A2.2 Spectre Autler Townes dans la direction arrière à la limite Doppler

Nous supposons que l'on observe le trou Autler Townes dans la direction avant (§ 11-3.2) et nous nous demandons quel est le spectre dans la direction arrière. La construction graphique est donnée sur la Figure A2.2.

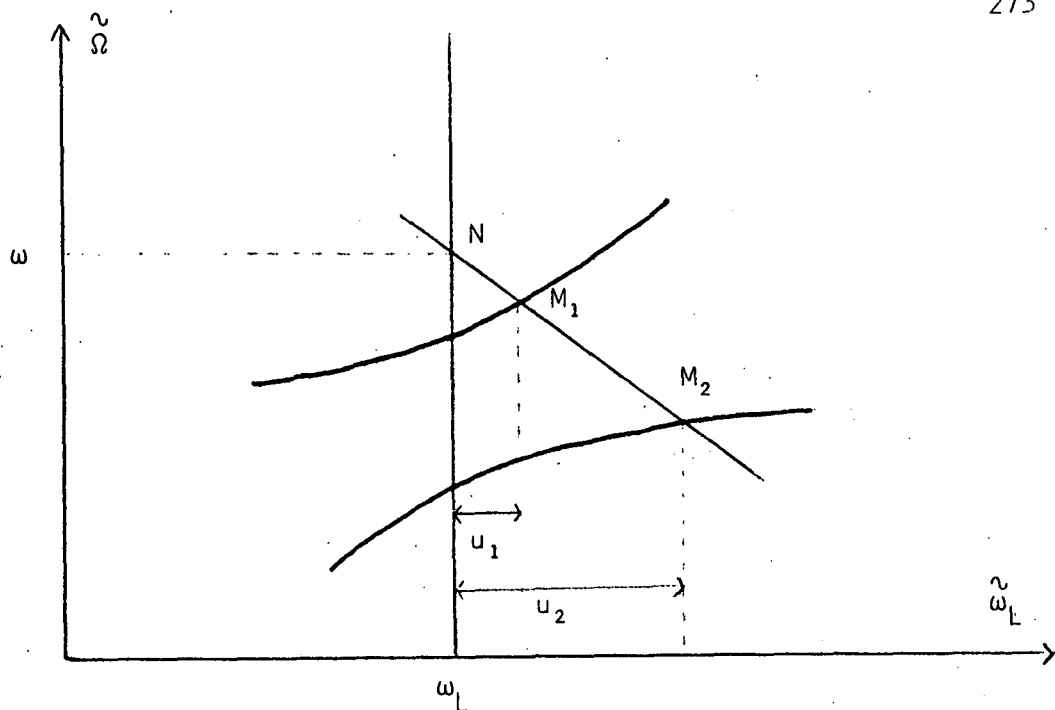


Fig A2.2 : La construction graphique lorsqu'on observe vers l'arrière (la droite NM_2 a une pente négative).

Il est déjà évident d'après cette construction graphique que le spectre ne présente aucune structure de largeur γ (pas de résonances de compensation). Nous démontrons de plus maintenant qu'il n'y a pas de structure de largeur ω_1 . L'expression du spectre est (expression II-2.12 page 137) :

$$K_0(\omega) = \sum_{\alpha} |g(u_{\alpha})| \left| \frac{du_{\alpha}}{d\omega} \right| \quad (\text{A2.14})$$

où les u_{α} sont les solutions de la construction graphique. Nous sommes dans la limite Doppler ($\omega_1 \ll \Delta$) et nous pouvons donc ignorer la variation de $g(u_{\alpha})$ avec u_{α} (du moins dans la région de largeur ω_1 où pourrait apparaitre une structure):

$$g(u_{\alpha}) = 1 \quad (\text{A2.15})$$

On sait (d'après la figure II-2.6 page 136) que :

$$\frac{du_{\alpha}}{d\omega} = \frac{1}{p_{\alpha} - s} \quad (\text{A2.16})$$

où p_{α} est la pente du diagramme de fréquence au point M_{α} . De plus $p_{\alpha} > 0$, $s < 0$ et donc $p_{\alpha} - s > 0$ et

$$\left| \frac{du_{\alpha}}{d\omega} \right| = \frac{du_{\alpha}}{d\omega} = \frac{1}{p_{\alpha} - s} \quad (\text{A2.17})$$

Enfin, on peut aussi exprimer I_α en fonction de p_α d'après les résultats du paragraphe précédent

$$I_\alpha \sim | \langle i, n | a, n+1 \rangle |^2 \sim (1-p_\alpha) \quad (A2.18)$$

On obtient donc à une constante près

$$K_0(\omega) = \sum_\alpha \frac{1-p_\alpha}{p_\alpha - s} \quad (A2.19)$$

Or, on peut démontrer que cette expression ne dépend pas de ω . En effet

$$(1-p_\alpha) = (1-s) - (p_\alpha - s) \quad (A2.20)$$

$$(1-p_\alpha)/(p_\alpha - s) = (1-s) \frac{du_\alpha}{d\omega} - 1 \quad (A2.21)$$

$$K_0(\omega) = (1-s) \frac{d}{d\omega} \left(\sum_\alpha u_\alpha \right) - 2 \quad (A2.22)$$

et on montre en écrivant l'équation du second degré dont les u_α sont les deux solutions que

$$\sum_\alpha u_\alpha = [(1-2s)(\omega - \omega_0') + s(\omega_L - \omega_0)] / (s(s-1)) \quad (A2.23)$$

d'où

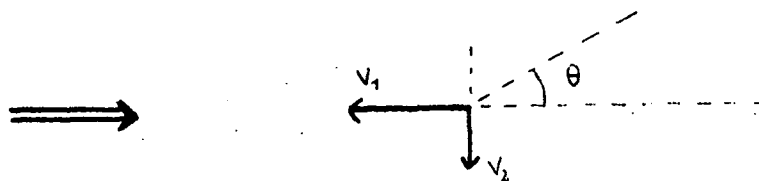
$$\frac{d}{d\omega} \sum_\alpha u_\alpha = (1-2s)/(s(s-1)) \quad (A2.24)$$

$$\text{et} \quad K_0(\omega) = -1/s \quad (A2.25)$$

On a donc montré que le spectre Autler Townes dans la direction arrière ne présente aucune structure de largeur γ ou ω_1 . Il varie bien sur une largeur Δ .

A2.3 Observation sous un angle θ

Nous appellerons v_1 la composante de la vitesse suivant la direction du laser et v_2 la composante orthogonale située dans le plan d'observation (voir Fig A2.3).



La composante de la vitesse dans la direction d'observation est donc :

$$v_{\theta} = v_1 \cos \theta + v_2 \sin \theta \quad (\text{A2.26})$$

Nous poserons

$$u_1 = \omega_0 v_1 / c ; \quad u_2 = \omega_0 v_2 / c ; \quad u_{\theta} = \omega_0 v_{\theta} / c \quad (\text{A2.27})$$

Les lois de distribution de u_1 et u_2 sont toutes les deux des gaussiennes de largeur Δ (largeur totale à $1/e$)

$$g(u_1) \sim \exp(-4u_1^2/\Delta^2) \quad (\text{A2.28})$$

En se plaçant dans l'hypothèse des champs ultra intenses ($\omega_1 \gg \Delta$), on peut écrire la fréquence d'émission $\tilde{\Omega}$ d'un atome dans son référentiel propre

$$\tilde{\Omega} = \Omega_M + p u_1 \quad (\text{A2.29})$$

où p est la pente du diagramme au point M ; voir le § 11-4.2). On obtient la fréquence d'émission Ω dans le laboratoire en retranchant le déplacement Doppler

$$\Omega = \tilde{\Omega} - s u_{\theta} \quad (\text{A2.30})$$

$$= \Omega_M + p u_1 - s (u_1 \cos \theta + u_2 \sin \theta) \quad (\text{A2.31})$$

On en déduit l'expression de la composante du spectre centré en Ω_M

$$K(\omega) = \iint g(u_1) du_1 g(u_2) du_2 f(\omega - \Omega_M - p u_1 + s(u_1 \cos \theta + u_2 \sin \theta)) \quad (\text{A2.32})$$

où $f(x)$ est la forme de raie correspondant à l'émission d'un seul atome.

Si nous négligeons la largeur homogène γ , nous pouvons écrire :

$$f(x) = I_M \delta(x) \quad (\text{A2.33})$$

où I_M est l'intensité émise par un atome et δ la distribution de Dirac. On montre

sans difficulté que l'intégrale (A2.32) est alors gaussienne

$$K_0(\omega) \sim \exp(-4(\omega - \Omega_M)^2/L^2) \quad (\text{A2.34})$$

dont la largeur L (largeur totale à 1/e) est donnée par

$$L^2 = \Delta^2((p - s \cos \theta)^2 + s^2 \sin^2 \theta) \quad (\text{A2.35})$$

$$= \Delta^2(p^2 + s^2 - 2ps \cos \theta) \quad (\text{A2.36})$$

Si maintenant nous tenons compte de la largeur homogène γ , $K(\omega)$ est en fait le produit de convolution de la gaussienne de largeur L que nous venons d'obtenir par une lorentzienne de largeur γ . Cette convolution n'aura d'effet que pour $L < \gamma$, c'est-à-dire si on est au voisinage de la compensation qui correspond à $L = 0$ ($p = s$ et $\cos \theta = 1$ dans A2.36).

A P P E N D I C E A3 =====

OPTIMISATION DE LA FOCALISATION DES FAISCEAUX POMPE ET SONDE

Dans cet appendice, nous nous posons le problème suivant : nous disposons d'une puissance P donnée à l'entrée de la cellule d'expérience ; nous supposons d'autre part que la longueur de la décharge est ℓ . Dans ces conditions, quelles valeurs faut-il choisir pour les "waists" w_p et w_s des faisceaux pompe et sonde si l'on veut que la hauteur A du pic de compensation soit la plus grande possible (nous discutons ce problème pour une expérience à deux lasers et non pour une expérience en fluorescence parce que c'est dans ce cas que les applications sont les plus nombreuses et les plus intéressantes).

Dans un premier temps (§ A 3.1) , nous démontrons un résultat énoncé dans le § III-2.4 : il existe une valeur optimale pour w_s correspondant à une situation où la longueur de divergence du faisceau sonde est adaptée à la longueur ℓ de la décharge

$$2 \pi w_s^2 / \lambda_s = \ell \quad (A3.1)$$

Cette valeur de w_s correspond en effet à un minimum de la dispersion $\Delta\omega_1$ des valeurs de ω_1 .

La valeur de w_s étant ainsi imposée, nous savons que la valeur de ω_1 est d'autant plus grande que w_p est plus petit

$$\omega_1 \sim 1/w_p \quad (A3.2)$$

Mais nous savons aussi que $\Delta\omega_1$ augmente quand w_p diminue et ceci beaucoup plus vite que ω_1 puisque l'on démontre dans le § A3.1 que

$$\Delta\omega_1 / \omega_1 \sim w_s^2 / w_p^2 \quad (A3.3)$$

Dans le § A3.2 nous montrons qu'il existe une valeur optimale de w_p correspondant à la valeur maximale de A que l'on peut atteindre pour P et ℓ donnés.

A3.1 Optimisation de la focalisation du faisceau sonde

Nous supposons que le faisceau pompe est un faisceau gaussien [Dn 1] de puissance P et de waist w_p . La répartition transverse du champ électrique $\mathcal{E}$ est donc donnée, en fonction de la distance r à l'axe du faisceau, par

$$\mathcal{E} = \mathcal{E}_0 \exp(-r^2/w_p^2) \quad (\text{A3.4})$$

avec
$$\mathcal{E}_0 = \left(\frac{4P}{\epsilon_0 c \pi w_p^2} \right)^{1/2} \quad (\text{A3.5})$$

La fréquence de Rabi ω_1 varie comme $\mathcal{E}$ puisque

$$\omega_1 = d\mathcal{E} / \hbar \quad (\text{A3.6})$$

Il y a donc une certaine dispersion $\Delta\omega_1$ des valeurs de ω_1 "vues" par le faisceau sonde de "waist" w_s . Pour calculer cette dispersion, on peut supposer que w_s est plus petit que w_p et faire un développement en w_s/w_p . Dans la région contribuant au signal

$$r \sim w_s \ll w_p \quad (\text{A3.7})$$

et nous pouvons développer (A3.4) sous la forme

$$\mathcal{E} = \mathcal{E}_0 \left(1 - \frac{r^2}{w_p^2} \right) \quad (\text{A3.8})$$

On en déduit que la dispersion relative $\Delta\mathcal{E}/\mathcal{E}_0$ des valeurs de $\mathcal{E}$ est de l'ordre de w_s^2/w_p^2 . On a donc intérêt à focaliser le faisceau sonde. Mais la divergence du faisceau sonde due à la diffraction joue alors un rôle important en augmentant les valeurs de r^2 et donc la dispersion de $\mathcal{E}$ (d'après A3.8). Il nous faut donc calculer la dispersion

$$\Delta\mathcal{E} = \mathcal{E}_0 \Delta r^2 / w_p^2 \quad (\text{A3.9})$$

(d'après A3.8) en tenant compte de la divergence du faisceau sonde (Fig A4.1).

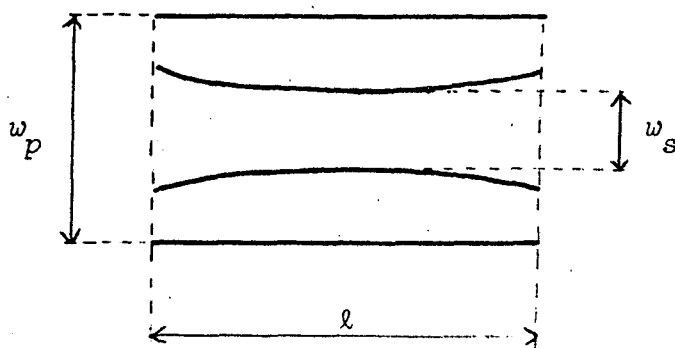


Fig. A4.1 : Disposition des faisceaux sonde ("waist" w_s) et pompe ("waist" w_p). On tient compte de la divergence du faisceau P sonde sur la longueur l de la décharge. On néglige par contre la divergence du faisceau pompe sur cette longueur.

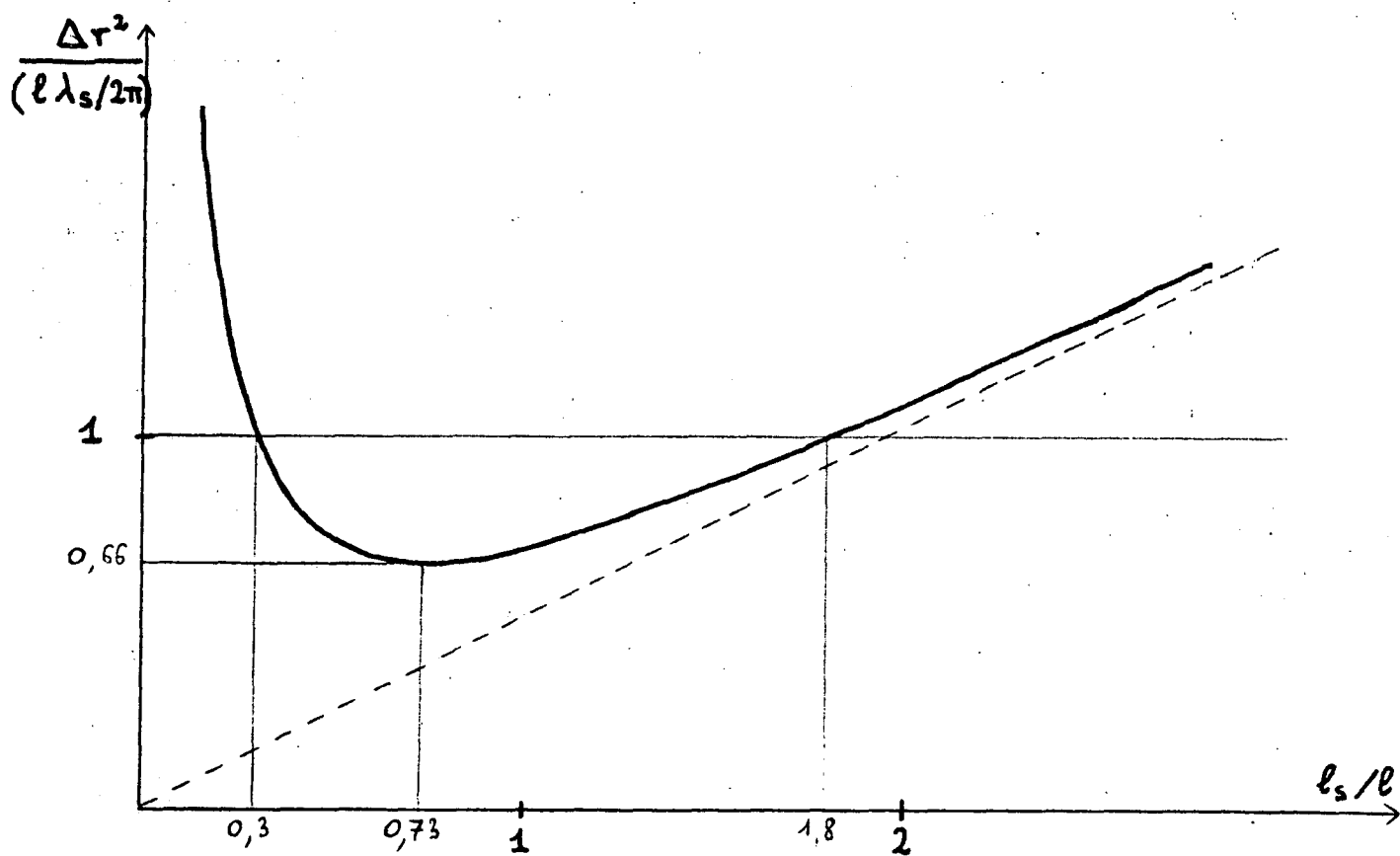


Fig. A4.2 : Valeur calculée de la dispersion Δr^2 (ramenée à $l \lambda_s / 2\pi$) en fonction du rapport l_s / l .

Nous appelons ℓ_s la longueur de divergence du faisceau sonde

$$\ell_s = 2 \pi w_s^2 / \lambda_s \quad (\text{A3.10})$$

(distance entre les deux points où le rayon du faisceau est $w_s \sqrt{2}$;

ℓ_s est égal à 2 fois ce que l'on appelle habituellement la longueur de Rayleigh [Dn 1]). On calcule alors la dispersion Δr^2 des valeurs de r^2 sur une longueur ℓ du faisceau sonde (Fig A3.1) :

$$\Delta r^2 = (\overline{r^4} - \overline{r^2}^2)^{1/2} \quad (\text{A3.11})$$

où $\overline{r^4}$ et $\overline{r^2}$ sont les valeurs moyennes de r^4 et r^2 quand on pondère par la puissance du faisceau sonde. On obtient ainsi

$$\Delta r^2 = \frac{w_s^2}{2} \left(1 + \frac{2}{3} \frac{\ell^2}{\ell_s^2} + \frac{13}{45} \frac{\ell^4}{\ell_s^4} \right)^{1/2} \quad (\text{A3.12})$$

(pour écrire A3.8, nous avons fait un développement au premier ordre en w_s^2/w_p^2 ; nous n'avons donc pas dans le calcul de A3.12 tenu compte de la divergence du faisceau pompe qui se produit sur une longueur plus grande que ℓ_s dans un facteur w_p^2/w_s^2)

On a évidemment intérêt à ce que ℓ soit le plus court possible. Mais supposons que la valeur de ℓ soit imposée par d'autres considérations (des considérations de signal par exemple). On constate alors que quand on diminue w_s c'est-à-dire aussi ℓ_s d'après A3.10), Δr^2 diminue tant que $\ell_s > \ell$, passe par un minimum autour de $\ell = \ell_s$, puis augmente pour $\ell_s < \ell$. Sur la Fig A3.2, nous avons représenté la variation de Δr^2 en fonction de ℓ_s/ℓ .

La valeur minimale de Δr^2 est

$$\Delta r^2 = 0,66 \ell \lambda_s / 2\pi \quad \text{pour } \ell_s / \ell = 0,73 \quad (\text{A3.13})$$

mais on voit que :

$$\Delta r^2 < \ell \lambda_s / 2\pi \quad \text{pour } 0,3 < \ell_s / \ell < 1,8 \quad (\text{A3.14})$$

Dans la pratique, on retiendra que la focalisation optimale du faisceau sonde correspond à :

$$\ell_s \simeq \ell \quad \text{soit} \quad w_s^2 \simeq \lambda \ell / 2\pi \quad (\text{A3.15})$$

D'après (A3-6) et (A3-8) la dispersion relative des valeurs de ω_1 est

$$\begin{aligned}\Delta\omega_1/\omega_1 &= \Delta\epsilon/\epsilon_0 = \Delta r^2/w_p^2 \\ &= 2\lambda_s/(2\pi w_p^2) \\ &= w_s^2/w_p^2\end{aligned}\quad (A3.16)$$

(w_s^2 étant la valeur optimale définie par A3.15)

A3.2 Optimisation de la focalisation du faisceau pompe

La méthode graphique développée dans la deuxième partie permet d'estimer, de façon relativement simple, l'effet de la dispersion des valeurs de ω_1 .

Rappelons d'abord quelques résultats que nous avons obtenus dans le § 11-4 en négligeant toute dispersion de ω_1 . L'effet de compensation se produit lorsque la pente p_0 au point 0 du diagramme (Fig. 11-4.4 page 165) est égale à s .

Comme

$$p_0 = \omega_1^2/(\omega_1^2 + 2\delta^2) \quad (A3.17)$$

(eq. 11-4.9), la compensation correspond à une valeur bien précise du rapport ω_1/δ (eq. 11-4.10). Les atomes contribuant à l'émission dans la résonance de compensation correspondent à un intervalle Δu sur l'axe des vitesses

$$\Delta u \sim (\omega_1^2/\gamma)^{1/3} \quad (A3.18)$$

(eq. 11-4.29 page 173) et la hauteur A de cette résonance (rapportée à la hauteur du signal en l'absence de compensation) est donc :

$$A \sim \Delta u/\gamma \quad (A3.19)$$

$$\sim (\omega_1/\gamma)^{2/3} \quad (A3.20)$$

(eq. 11-4.30 et 11-4.31)

Quel est maintenant l'effet de la dispersion $\Delta\omega_1$ de ω_1 . Elle se traduit par une dispersion de p_0 que l'on peut déduire de (A3.17).

$$\Delta p_0 = 2s(1-s)\Delta\omega_1/\omega_1 \quad (A3.21)$$

(pour écrire A3.21 on a tenu compte de $p_0 = s$).

Les fréquences d'émission des atomes dont la vitesse est dans l'intervalle Δu subissent de ce fait un étalement sur une largeur

$$\Delta p_0 \times \Delta u \sim \Delta u \times \Delta \omega_1 / \omega_1 \quad (\text{A3.22})$$

(d'après A3.21). Quand on diminue w_p , cette largeur augmente rapidement (Δu et $\Delta \omega_1 / \omega_1$ augmentent tous les deux). Si on veut que la hauteur A de la résonance de compensation soit la plus grande possible, on diminuera donc w_p jusqu'à ce que cette largeur soit de l'ordre de γ

$$\Delta u \times \Delta \omega_1 / \omega_1 \sim \gamma \quad (\text{A3.23})$$

Au delà, A diminuerait parce que l'étalement des fréquences d'émission correspondant à l'intervalle Δu serait trop grand.

La relation (A3.23) va maintenant nous permettre de déterminer la valeur optimale de w_p . Dans ce but, écrivons ω_1 sous la forme (dédue de A3.5 et A3.6) :

$$\omega_1 = \alpha w_s / w_p \quad (\text{A3.24})$$

avec

$$\alpha = \frac{d}{h} \left(\frac{4P}{\epsilon_0 c \pi w_s^2} \right)^{1/2} \quad (\text{A3.25})$$

w_s est la valeur optimale du waist du faisceau sonde déterminée par A3.15 et α est la valeur de ω_1 que l'on obtiendrait pour $w_p = w_s$. La condition (A3.23) s'écrit :

$$\frac{\omega_1}{\Delta \omega_1} = \frac{\Delta u}{\gamma} = \left(\frac{\omega_1}{\gamma} \right)^{2/3} \quad (\text{A3.26})$$

soit

$$\frac{w_p^2}{w_s^2} = \left(\frac{\alpha}{\gamma} \frac{w_s}{w_p} \right)^{2/3} \quad (\text{A3.27})$$

(d'après A3.18, A3.16 et A3.24). On en déduit la valeur optimale de w_p

$$w_p = w_s (\alpha / \gamma)^{1/4} \quad (\text{A3.28})$$

et, par conséquent, celle de A (d'après A3.20 et A3.24)

$$A = \left(\frac{\alpha}{\gamma} \frac{w_s}{w_p} \right)^{2/3} = \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{1/2} \quad (\text{A3.29})$$

On retrouve donc bien les résultats annoncés dans le § III-4. En effet, d'après sa définition, α est proportionnel à $\sqrt{P}$ et inversement proportionnel à w_s c'est-à-dire à $\sqrt{\ell}$. Quand on augmente P , on doit aussi augmenter w_p proportionnel à $(P)^{1/8}$ (A3.26). Enfin, la hauteur que l'on peut attendre varie d'après (A3.27) comme

$$A \sim \left(\frac{P}{\ell \gamma^2} \right)^{1/4} \quad (\text{A3.30})$$

Remarques

(i) Dans tout le raisonnement ci-dessus, nous avons supposé que la compensation de l'effet Doppler n'était que partielle ($\Delta u < \Delta$). Le résultat obtenu pour A (eq. A3-27) n'est donc valable que si l'on trouve une valeur inférieure à la valeur limite:

$$A_{\infty} = \frac{s(1-s)}{\sqrt{\pi}} \frac{\Delta}{\gamma} \quad (\text{A3.31})$$

correspondant à la compensation totale. Quand cette valeur limite est atteinte, il n'est plus utile d'augmenter la puissance

(ii) Nous nous sommes ici intéressés seulement à l'effet de $\Delta \omega_1$ sur la hauteur A de la composante centrale. On peut aussi étudier l'effet sur les composantes latérales qui est plus important. En effet, une variation de ω_1 se traduit par une variation de leur position, ce qui n'est pas le cas pour la raie centrale. A une dispersion $\Delta \omega_1$ correspond donc un élargissement des raies latérales proportionnel à $\Delta \omega_1$, alors qu'on peut l'écrire pour la raie centrale

$$\Delta \omega_1 \Delta u / \omega_1 = \Delta \omega (\gamma / \omega_1)^{1/3} \quad (\text{A3.32})$$

(voir A3.25 et A3.18). Dans les expériences que nous avons décrites dans la troisième partie nous avons choisi une dispersion $\Delta \omega_1$ inférieure à γ dont l'effet est peu important aussi bien pour les raies latérales que pour la raie centrale. La focalisation n'était donc pas optimisée pour avoir la valeur de A la plus grande possible.

(iii) Il est intéressant de voir ce que deviendrait la discussion ci-dessus dans le cas de l'effet Autler Townes. Nous savons déjà que A augmente seulement comme

$$A \sim (\omega_1 / \gamma)^{1/2} \quad (\text{A3.35})$$

parce que la compensation est limitée par la courbure du diagramme (termes d'ordre 2 et non d'ordre 3). Mais, de plus, la position de la résonance dépend de ω_1 et il faut donc arrêter de focaliser dès que

$$\Delta \omega_1 \sim \gamma \quad (\text{A3.34})$$

c'est-à-dire (d'après A3.24 et A3.16) pour

$$w_p = w_s \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{1/3} \quad (\text{A3.35})$$

(valeur plus grande qu'en A3.28). La valeur optimale de A est donc :

$$A = \left(\frac{\alpha}{\gamma} \frac{w_s}{w_p} \right)^{1/2} = \left(\frac{\alpha}{\gamma} \right)^{1/3} \quad (\text{A3.36})$$

$$\sim \left(\frac{P}{\ell \gamma^2} \right)^{1/6} \quad (\text{A3.37})$$

(valeur moins grande que A3.30)

A P P E N D I C E A4

APPENDICE RELATIF A LA METHODE ALGEBRIQUE

Dans cet appendice, nous discutons d'abord quelques propriétés de la fonction $G(u)$ qui permettent de la calculer sur ordinateur (§ A4.1). Ensuite, nous explicitons dans des cas particuliers, le résultat général de la méthode algébrique ; nous obtenons ainsi l'expression algébrique relative à l'effet Autler Townes (§ A4.2) puis celle donnant la hauteur de la résonance de compensation discutée dans le chapitre II-4 (§ A4.3).

A4.1 Quelques propriétés de la fonction $G(u)$

La fonction $G(u)$ est définie par l'équation (IV-2.22)

$$G(u) = \frac{1}{i\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{du' g(u')}{u' - u} \quad (\text{A4.1})$$

où u est un nombre complexe non réel, u' un nombre réel et $g(u')$ est la fonction de distribution des vitesses

$$g(u') = g_0 \exp(-4u'^2/\Delta^2) \quad (\text{A4.2})$$

(g_0 est une constante, voir IV-2.12). On peut écrire (A4.1) en changeant de variables

$$G(u) = g_0 \frac{1}{i\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dt \exp(-t^2)}{t - z} \quad (\text{A4.3})$$

avec

$$t = 2u'/\Delta \quad (\text{A4.4})$$

$$z = 2u/\Delta \quad (\text{A4.5})$$

Pour calculer la fonction G , on utilise le fait qu'elle est reliée aux "fonctions d'erreur à arguments complexes" [Dp]. En effet si l'on définit, pour une variable complexe ξ , les fonctions

$$\operatorname{erf} \xi = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^{\xi} \exp(-\tau^2) d\tau \quad (\text{A4.6})$$

$$\text{et} \quad w(\xi) = \exp(-\xi^2) (1 - \operatorname{erf}(-i\xi)) \quad (\text{A4.7})$$

on peut montrer en utilisant les propriétés de $w[Dp]$ que (A4.3) s'écrit :

$$G(u) = g_0 \in w(\epsilon z) \quad (\text{A4.8})$$

où $z=2u/\Delta$ (eq. A4.5) et où ϵ est le signe de la partie imaginaire de z .

On pourra donc calculer la fonction G sur un ordinateur ayant dans sa bibliothèque mathématique les fonctions d'erreur à arguments complexes ; c'est ce que nous avons fait sur le processeur UNIVAC d'Orsay. On pourra sinon calculer w par le développement en série suivant $[Dp]$:

$$w(\xi) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{(i\xi)^n}{\Gamma(\frac{n}{2} + 1)} \quad (\text{A4.9})$$

Il sera intéressant dans la suite de connaître la valeur asymptotique de $w(\xi)$ pour ξ grand. On peut montrer $[Dp]$ que

$$w(\xi) \sim \frac{i}{\xi\sqrt{\pi}} \quad \text{pour } |\xi| \rightarrow \infty \quad (\text{A4.10})$$

et $\operatorname{Im} \xi > 0$

(on remarque sur l'équation A4.8 que l'on calcule toujours la valeur de w pour un argument ϵz dont la partie imaginaire est positive puisque ϵ est justement le signe de la partie imaginaire de z)

A4.2 Expression algébrique relative à l'effet Autler Townes

Dans ce paragraphe, on calcule d'abord l'expression rationnelle du spectre Autler Townes émis par un atome ; on en déduit ensuite l'expression algébrique du spectre de la vapeur.

Expression rationnelle du spectre d'émission d'un atome

On reprend la démonstration générale du § IV-2.1 dans le cas particulier de l'effet Autler Townes (Fig A4.1)

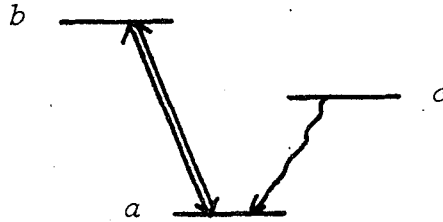


Fig A4.1 Schéma de niveaux correspondant à l'effet Autler Townes

Le spectre d'émission sur la transition ca s'écrit :

$$S(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L) = \text{Re} \frac{1}{\pi} \int_0^\infty \langle D^+(t+\tau) D^-(t) \rangle \exp(-i\tilde{\omega}\tau) d\tau \quad (\text{A4.11})$$

(eq. IV-2.1) où D^+ et D^- sont les parties ascendante et descendante du dipole atomique

$$D^+ = d |c\rangle \langle a| \quad (\text{A4.12})$$

$$D^- = d |a\rangle \langle c| \quad (\text{A4.13})$$

L'interaction atome laser couple les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ (Fig A4.1) ; l'évolution de D^+ est par conséquent couplée à celle de l'opérateur $|c\rangle \langle b|$. Pour obtenir des équations indépendantes du temps, on passe dans le référentiel tournant. Une manière équivalente pour obtenir ces équations indépendantes du temps est de travailler dans la base des états non perturbés de l'atome habillé ; D^+ s'écrit alors

$$D^+ = d \sum_n |c, n\rangle \langle a, n| \quad (\text{A4.14})$$

et il est couplé par l'interaction atome laser à l'opérateur E^+ :

$$E^+ = d \sum_n |c, n\rangle \langle b, n-1| \quad (\text{A4.15})$$

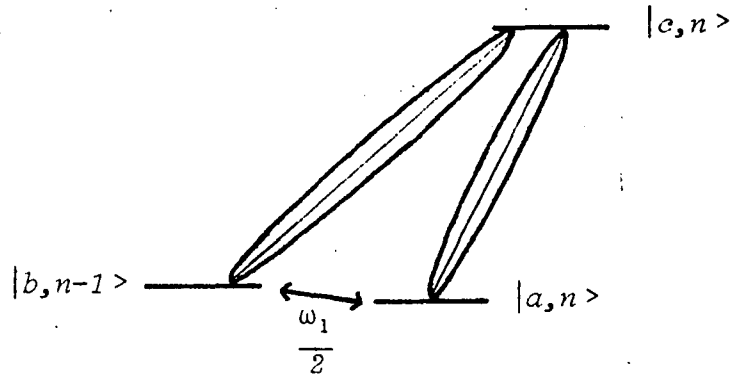


*Fig A4.2 On étudie l'évolution des cohérences $\langle a,n | \rho(t) | c,n \rangle$ et $\langle b,n-1 | \rho(t) | c,n \rangle$ couplées par l'interaction atome-laser
Rappelons qu'il y a en fait une infinité de multiplicités de l'atome habillé telles que celle dessinée ici.*

On peut facilement écrire les équations d'évolution des valeurs moyennes de D^+ et E^+

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} \langle D^+(t) \rangle \\ \langle E^+(t) \rangle \end{pmatrix} = iM \begin{pmatrix} \langle D^+(t) \rangle \\ \langle E^+(t) \rangle \end{pmatrix} \quad (A4.16)$$

avec :

$$M = \begin{bmatrix} \omega_0' + i\gamma_{ac}/2 & -\omega_1/2 \\ -\omega_1/2 & \omega_0' + \tilde{\omega}_L - \omega_0 + i\gamma_{bc}/2 \end{bmatrix} \quad (A4.17)$$

Les deux termes diagonaux représentent l'évolution propre et la relaxation des deux cohérences ; les deux termes non diagonaux traduisent l'effet de l'interaction atome laser.

Le théorème de régression quantique nous permet de déduire de (A4.16) les équations d'évolution de $\langle D^+(t+\tau) D^-(t) \rangle$ et $\langle E^+(t+\tau) D^-(t) \rangle$ pour $\tau > 0$:

$$\frac{d}{d\tau} \begin{pmatrix} \langle D^+(t+\tau) D^-(t) \rangle \\ \langle E^+(t+\tau) D^-(t) \rangle \end{pmatrix} = iM \begin{pmatrix} \langle D^+(t+\tau) D^-(t) \rangle \\ \langle E^+(t+\tau) D^-(t) \rangle \end{pmatrix} \quad (A4.18)$$

On peut passer de ces équations différentielles à des équations algébriques par une transformation de Laplace :

$$i(\tilde{\omega} - M) \mathcal{F} = \begin{pmatrix} \langle D^+(t) D^-(t) \rangle \\ \langle E^+(t) D^-(t) \rangle \end{pmatrix} \quad (A4.19)$$

avec :

$$\mathcal{F} = \int_0^\infty \begin{pmatrix} \langle D^+(t+\tau) D^-(t) \rangle \\ \langle E^+(t+\tau) D^-(t) \rangle \end{pmatrix} \exp(-i\tilde{\omega}\tau) d\tau \quad (A4.20)$$

On calcule facilement le deuxième membre de (A4.19). En effet d'après (A4.12) (A4.13) et (A4.15)

$$D^+ D^- = d^2 |c\rangle \langle c| \quad (A4.21)$$

$$\langle D^+(t) D^-(t) \rangle = d^2 \pi_c \quad (A4.22)$$

(où π_c est la population du niveau c)

$$E^+ D^- = 0 \quad (A4.23)$$

$$\langle E^+(t) D^-(t) \rangle = 0 \quad (A4.24)$$

D'après (A4.11) et (A4.20), le spectre de fluorescence se calcule comme la partie réelle de la première composante de $\mathcal{F}$. On l'obtient donc en résolvant l'équation (A4.19), c'est-à-dire en inversant la matrice $(\tilde{\omega} - M)$:

$$S(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L) = \text{Re} \frac{1}{i\pi} \left[\frac{1}{\tilde{\omega} - M} \right]_{1,1} d^2 \pi_c \quad (A4.25)$$

($A_{1,1}$ est l'élément de la première ligne et de la première colonne de la matrice A).
Connaissant l'expression (A4.17) de la matrice M , on obtient finalement :

$$S(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L) = \text{Re} \frac{1}{i\pi} \frac{N(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)}{D(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)} \quad (A4.26)$$

où

$$D(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L) = D \det(\tilde{\omega} - M) \quad (A4.27)$$

$$= (\tilde{\omega} - \omega_0' - \frac{i\gamma_{ac}}{2}) (\tilde{\omega} - \omega_0' - \tilde{\omega}_L + \omega_0 - \frac{i\gamma_{bc}}{2}) - \frac{\omega_1^2}{4} \quad (A4.28)$$

$$\text{et } N(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L) = d^2 \pi_c (\tilde{\omega} - \omega_0' - \tilde{\omega}_L + \omega_0 - \frac{i\gamma_{bc}}{2})$$

Expression algébrique du spectre de la vapeur

On sait maintenant (eq. IV-2.21) que le spectre de vapeur $K(\omega)$ s'exprime sous la forme

$$K(\omega) = \text{Re} \sum_{\alpha} r_{\alpha} G(u_{\alpha}) \quad (\text{A4.30})$$

où les u_{α} et les r_{α} sont les poles et les résidus de la fraction rationnelle en u

$$\frac{P(\omega, u)}{Q(\omega, u)} = \frac{N(\omega + su, \omega_L + u)}{D(\omega + su, \omega_L + u)} \quad (\text{A4.31})$$

et où G est la fonction étudiée au paragraphe précédent :

$$G(u_{\alpha}) = g_0 \epsilon_{\alpha} w(\epsilon_{\alpha} \frac{2u_{\alpha}}{\Delta}) \quad (\text{A4.32})$$

(ϵ_{α} est le signe de la partie imaginaire de u_{α}). Les poles u_{α} sont les solutions de l'équation du deuxième degré en u :

$$D(\omega + su, \omega_L + u) = 0 \quad (\text{A4.33})$$

(voir l'expression A4.28 de D).

Quand on connaît ces solutions u_{α} , on calcule les résidus r_{α} par l'expression

$$r_{\alpha} = \frac{P(\omega, u)}{Q'_u(\omega, u)} \quad (u = u_{\alpha}) \quad (\text{A4.34})$$

$$\text{où } P(\omega, u) = N(\omega + su, \omega_L + u) \quad (\text{A4.35})$$

(voir l'expression A4.29 de N) et

$$\begin{aligned} Q'_u(\omega, u) &= \frac{\partial}{\partial u} D(\omega + su, \omega_L + u) \\ &= s(\omega + su - \omega_0' - (\omega_L + u) + \omega_0 - \frac{i\gamma_{bc}}{2}) \\ &\quad + (s-1)(\omega + su - \omega_0' - \frac{i\gamma_{ac}}{2}) \end{aligned} \quad (\text{A4.36})$$

(voir l'expression A4.28 de D).

Ayant ainsi établi la méthode de calcul de $K(\omega)$ il ne reste plus qu'à écrire un programme permettant de faire ce calcul sur ordinateur. C'est ainsi qu'ont été calculés tous les spectres théoriques présentés dans le chapitre 11-3.

Remarque :

La méthode graphique nous a permis de montrer que la relaxation n'intervient que par la largeur γ des raies d'émission correspondant aux points où se produit la compensation. Il est donc inutile de garder les deux paramètres γ_{ab} et γ_{bc} et on pourra donc simplifier en posant

$$\gamma_{ab} = \gamma_{bc} = \gamma$$

A4.3. Expression algébrique de la hauteur A de la résonance de compensation

On reprend d'abord le calcul du paragraphe précédent pour le système à trois niveaux discuté dans le chapitre 11-4. On obtient ainsi l'expression rationnelle du spectre d'émission d'un atome puis l'expression algébrique du spectre de la vapeur. On passe ensuite à la valeur particulière $\omega = \omega'_0$, ce qui nous donne l'expression de la hauteur A de la résonance de compensation

Expression rationnelle du spectre d'émission d'un atome

Le niveau a de la Fig A4.1 est maintenant couplé par le laser à deux sous niveaux b_+ et b_- . Il nous faut donc étudier l'évolution couplée de D^+ , E_+^+ et E_-^+ (définis comme E^+ dans l'équation A4.15 en remplaçant b par b_+ et b_-). Cette évolution est décrite par une équation du même type que A4.16 à part qu'elle concerne une matrice colonne à trois éléments $\langle D^+(t) \rangle$, $\langle E_+^+(t) \rangle$ et $\langle E_-^+(t) \rangle$ et que la matrice M est donc une matrice 3x3

$$M = \begin{pmatrix} \omega'_0 + i\gamma/2 & -\omega_1/2 & -\omega_1/2 \\ -\omega_1/2 & \omega'_0 + \tilde{\omega}_L - (\omega_0 + \delta) + i\gamma/2 & 0 \\ -\omega_1/2 & 0 & \omega'_0 + \tilde{\omega}_L - (\omega_0 - \delta) + i\gamma/2 \end{pmatrix}$$

(comme nous l'avons dit ci-dessus, un seul paramètre de relaxation, γ , est suffisant). On obtient finalement l'expression du spectre

$$S(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L) = \operatorname{Re} \frac{1}{i\pi} \frac{N(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)}{D(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L)} \quad (\text{A4.38})$$

avec les valeurs suivantes pour les deux polynômes

$$D(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L) = D \text{ et } (\tilde{\omega} - M) \quad (\text{A4.39})$$

$$= \left(y - \frac{i\gamma}{2} \right) \left(y - x - \frac{i\gamma}{2} \right)^2 - \delta^2 - \frac{\omega_1^2}{2} \left(y - x - \frac{i\gamma}{2} \right) \quad (\text{A4.40})$$

où nous avons noté pour simplifier

$$y = \tilde{\omega} - \omega_0 \quad x = \tilde{\omega}_L - \omega_0 \quad (\text{A4.41})$$

$$\text{et} \quad N(\tilde{\omega}, \tilde{\omega}_L) = \left(\left(y - x - \frac{i\gamma}{2} \right)^2 - \delta^2 \right) d^2 \pi c \quad (\text{A4.42})$$

Expression algébrique du spectre d'émission de la vapeur

On en déduit que

$$K(\omega) = \operatorname{Re} \sum_{\alpha} r_{\alpha} G(u_{\alpha}) = \operatorname{Re} \sum_{\alpha} r_{\alpha} g_0 \varepsilon_{\alpha} w(\varepsilon_{\alpha} \frac{2u_{\alpha}}{\Delta}) \quad (\text{A4.43})$$

où les u_{α} sont les solutions de l'équation du troisième degré en u

$$D(\omega + su, \omega_L + u) = 0 \quad (\text{A4.44})$$

(voir l'expression A4.40 de D) et les r_{α} sont donnés ensuite par

$$r_{\alpha} = \frac{P(\omega, u)}{Q'_u(\omega, u)} \quad (u = u_{\alpha}) \quad (\text{A4.45})$$

$$\text{où } P(\omega, u) = N(\omega + su, \omega_L + u) \quad (\text{A4.46})$$

(voir l'expression A4.42 de N) et

$$Q'_u(\omega, u) = \frac{\partial}{\partial u} D(\omega + su, \omega_L + u) \quad (\text{A4.47})$$

$$= s((y-x-\frac{i\gamma}{2})^2 - \delta^2) + (y-\frac{i\gamma}{2})2(y-x-\frac{i\gamma}{2})(s-1) - \frac{\omega_1^2}{2}(s-1) \quad (\text{A4.48})$$

avec $y = \omega + su - \omega_0'$ $x = \omega_L + u - \omega_0$ (A4.49)

La encore, c'est en calculant explicitement l'expression (A4.43) sur ordinateur que nous avons obtenu les spectres théoriques du chapitre II-4.

Hauteur A de la résonance de compensation

Calculer la hauteur de la résonance de compensation revient simplement à faire $\omega = \omega_0'$ dans les expressions précédentes ; on suppose de plus $\omega_L = \omega_0$, $\omega_1 \gg \gamma$; on prend enfin la valeur de δ correspondant à l'effet de compensation. En se servant de toutes ces hypothèses, on peut transformer l'équation (A4.44) pour la mettre sous la forme :

$$u^3 = \frac{-i\gamma \omega_1^2}{4s^2(1-s)^2} = -i \left(\frac{\Delta}{2}\beta\right)^3 \quad (\text{A4.50})$$

avec $\beta = \left(\frac{2\gamma \omega_1^2}{s^2(1-s)^2\Delta^3}\right)^{1/3}$ (A4.51)

Les trois solutions u_α sont donc égales à :

$$u_\alpha = +i\frac{\Delta}{2}\beta, \quad +ij\frac{\Delta}{2}\beta, \quad +ij^2\frac{\Delta}{2}\beta \quad (\text{A4.52})$$

où $j = \exp(2i\pi/3)$ (A4.53)

On en déduit les ϵ_α (signe de la partie imaginaire de u_α)

$$\epsilon_\alpha = +1, \quad -1, \quad -1 \quad (\text{A4.54})$$

(valeurs correspondant dans l'ordre aux u_α de A4.52). On montre que les résidus r_α correspondants peuvent être écrits

$$r_\alpha = -iku_\alpha \quad (\text{A4.55})$$

où k est une constante réelle. On obtient donc pour l'expression du spectre de vapeur (voir A4.43)

$$K(\omega = \omega_0') = g_0 k \operatorname{Re} \sum_{\alpha} (-iu_{\alpha} \epsilon_{\alpha}) w(\epsilon_{\alpha} \frac{2u_{\alpha}}{\Delta}) \quad (\text{A4.56})$$

Il nous faut enfin diviser cette valeur par celle qu'aurait le signal en l'absence d'irradiation (A est défini comme l'augmentation du signal due à l'effet de compensation) ; on obtient finalement le résultat que nous avait suggéré la construction graphique dans le § 11-4.3 :

$$A = A_{\infty} R(\beta) \quad (\text{A4.57})$$

où A_{∞} est la valeur limite de A correspondant à la compensation totale ($\beta \gg 1$)

$$A_{\infty} = \frac{s(1-s)}{\sqrt{\pi}} \frac{\Delta}{\gamma} \quad (\text{A4.58})$$

et $R(\beta)$ la fonction

$$R(\beta) = \beta \frac{\sqrt{\pi}}{3} \operatorname{Re} [w(i\beta) - jw(-ij\beta) - j^2 w(-ij^2\beta)] \quad (\text{A4.59})$$

C'est cette fonction, calculée sur ordinateur que nous avons tracée sur la Figure 11-4.10 (d'après A4.51, β est identique à $\Delta u/\Delta$)

Il est intéressant de noter que :

$$R(\beta) \sim \beta \frac{2\sqrt{\pi}}{3} \quad \text{pour} \quad \beta \ll 1 \quad (\text{A4.60})$$

(en effet $w(z) \rightarrow 1$ pour $z \rightarrow 0$ et de plus $1-j-j^2=2$). On obtient ainsi la valeur exacte de A dans le cas d'une compensation partielle.

$$\begin{aligned} A &= \frac{s(1-s)}{\sqrt{\pi}} \frac{\Delta}{\gamma} \frac{2\sqrt{\pi}}{3} \beta \\ &= \frac{2}{3} (2s(1-s))^{1/3} \left(\frac{\omega_1}{\gamma} \right)^{2/3} \end{aligned} \quad (\text{A4.61})$$

R E F E R E N C E S

A LA FLUORESCENCE DE RESONANCE

Aa Traitement perturbatif

- 1 A. EINSTEIN Physikal. Zeitschrift 18 121 (1917)
- 2 V. WEISSKOPF et E. WIGNER Zeit. f. Phys. 63 54 (1930)
- 3 W. HEITLER - Quantum Theory of Radiation, 3rd edition (1954, London, Oxford University Press)

Ab Travaux theoriques sur le triplet de fluorescence

- 1 S.G. RAUTIAN et I.I. SOBEL'MAN - Sov. Phys. JETP 14 , 328 (1962)
- 2 P.A. APANASEVICH - Optics and Spectroscopy , 16 , 387 (1964)
- 3 S.M. BERGMANN - J. Math. Phys. 8 , 159 (1967)
- 4 M.C. NEWSTEIN - Phys. Rev. 167 , 89 (1968)
- 5 V.A. MOROZOV - Optics and Spectroscopy, 26 , 62 (1969)
- 6 B.R. MOLLOW - Phys. Rev. 188 , 1969 (1969)
- 7 M.L. TER-MIKAELIAN and A.O. MELIKIAN - Soviet Physics JETP , 31 153 (1970)
- 8 C.R. STROUD Jr. Phys. Rev. A 3 , 1044 (1971) et Coherence and Quantum Optics , ed. L. MANDEL and E. WOLF (New York, London, Plenum Press). p. 537 (1972).
- 9 G. OLIVER, E. RESSAYRE and A. TALLET - Lettere al Nuovo Cimento, 2, 777 (1971)
- 10 R. GUSH and H.P. GUSH - Phys. Rev. A6 , 129 (1972).
- 11 G.S. AGARWAL - Quantum Optics , p. 108 , Springer Tracts In Modern Physics, vol 70 , (1974)
- 12 M.E. SMITHERS and H.S. FREEDHOFF - J. Phys. B7 , L 432 (1974)
- 13 M.E. SMITHERS and H.S. FREEDHOFF - J. Phys. B8 , 2911 (1975)
- 14 H.J. CARMICHAEL et D.F. WALLS - J. Phys. B8 , L77 (1975)
- 15 H.J. CARMICHAEL et D.F. WALLS - J. Phys. B9 , 1199-219 (1976)
- 16 H.J. KIMBLE and L. MANDEL - Phys. Rev. Letters , 34 , 1485 (1975)
- 17 H.J. KIMBLE and L. MANDEL - Phys. Rev. A 13 , 2123-44 (1976)
- 18 B.R. MOLLOW - Phys. Rev. A 12 , 1919 (1975)
- 19 S.S. HASSAN and R.K. BULLOUGH - J. Phys. B8 , L 147-52 (1975)
- 20 B. RENAUD , R.M. WHITLEY and C.R. STROUD Jr. - J. Phys. B9 , L 19-24 (1976)
- 21 S. SWAIN - J. Phys. B8 , L 437 (1975)
- 22 I.V. SOKOLOV et E.D. TRIFONOV - (article en russe), Vestn. Leningr. Univ. Fiz. and Khim 20 (1975 , Leningrad).

- 23 C. COHEN-TANNOUDJI in Ba 2 p. 324
- 24 C. COHEN-TANNOUDJI - in Ba 3
- 25 C. COHEN-TANNOUDJI et S. REYNAUD in "Multiphoton Processes"
Éditeurs J.H. EBERLY et P. LAMBROPOULOS (1978, New York, Wiley) p. 103.

Ac Observations expérimentales du triplet de fluorescence

- 1 F. SCHUDA, C.R. STROUD and M. HERCHER - J. Phys. B7, L 198 (1974)
- 2 H. WALTHER in Ba 2 p. 358
W. HARTIG, W. RASMUSSEN, R. SCHIEDER et H. WALTHER - Z. Phys. A278, 205 (1976)
- 3 F.Y. WU, R.E. GROVE and S. EZEKIEL - Phys. Rev. Lett. 35, 1426 (1975)
R.E. GROVE, F.Y. WU and S. EZEKIEL - Phys. Rev. A 15 227 (1977)
- 4 H.M. GIBBS, T.N.C. VENTAKESAN - IEEE J. Quant. Electronics, 11, 910 (1975)

Ad Le dégroupement de photons

- 1 C. COHEN-TANNOUDJI Ref Ab 24
- 2 H. CARMICHAEL et D.F. WALLS J. Phys. B9 L 43-46 et 1199-1219 (1976)
- 3 H.J. KIMBLE et L. MANDEL Phys. Rev. A 13 2133 (1976)
- 4 H.J. KIMBLE, M. DAGENAIS et L. MANDEL Phys. Rev. Lett 39 691 (1977)
- 5 M. DAGENAIS et L. MANDEL Phys. Rev. A18 2217 (1978)
- 6 C. COHEN-TANNOUDJI Cours au Collège de France 1979-1980
- 7 Voir aussi l'article suivant, signalant en particulier des résultats non encore publiés du groupe de H. Walther à Garching: D.F. WALLS Nature 280 451 (1979)

Ae Les corrélations entre photons filtrés

- 1 C. COHEN-TANNOUDJI et S. REYNAUD Phil. Trans. Roy. Soc. London A 293 233 (1979)
- 2 A. ASPECT, G. ROGER, S. REYNAUD, J. DALIBARD et C. COHEN-TANNOUDJI
Phys. Rev. Lett. 45 617 (1980)
- 3 J. DALIBARD Thèse de 3ème cycle Paris (1981)
- 4 P.A. APANASEVICH et S. Ja KILIN J. Phys. B 12 L 83 (1979)

Af L'Absorption d'un faisceau laser sonde

- 1 B.R. MOLLOW Phys. Rev. A5 2217 (1972)
F.Y. WU, S. EZEKIEL, M. DUCLOY et B.R. MOLLOW Phys. Rev. Lett. 38 1077 (1977)

- 2 A.M. BONCH-BRUEVICH , V.A. KHODOVOI et N.A. CHIGIR
JETP 40 1027 (1975) (ZETF 67 2069 (1974))
S.L. Mc GALL Phys. Rev. A9 1515 (1974)
H.M. GIBBS , S.L. Mc. CALL et T.N.C. VENKATESAN Phys. Rev. Lett. 36 1135 (1976)
- 3 La méthode de l'atome habillé est appliquée au spectre d'absorption dans les références Ab 25, Ah1 et Ah 2.

Ag Effet des fluctuations de l'onde laser

- 1 P. AVAN - Thèse de troisième cycle, Paris, 1976
P. AVAN et C. COHEN-TANNOUDJI - J. Phys. B10 , 155 (1977)
- 2 G.S. AGARWAL - Phys. Rev. Lett. 37 , 1383 (1976)
- 3 J.H. EBERLY - Phys. Rev. Lett. 37, 1387 (1976)
- 4 Revue récente de J.H. EBERLY dans Ba 5

Ah Systèmes à plus de deux niveaux

- 1 S. REYNAUD Thèse de 3ème cycle Paris 1977
- 2 C. COHEN-TANNOUDJI et S. REYNAUD J. Phys. B 10 345 (1977)
- 3 C. COHEN-TANNOUDJI et S. REYNAUD J. Phys. B 10 365 (1977)
- 4 C. COHEN-TANNOUDJI et S. REYNAUD J. Phys. B 10 2311 (1977)
- 5 C. COHEN-TANNOUDJI et S. REYNAUD Journal de Physique 38 L 173 (1977)

Ai Effets collectifs dans la résonance de fluorescence

- 1 R. BONIFACIO et L.A. LUGIATO in "Coherence and Quantum Optics"
éditeurs L. MANDEL et E. WOLF p. 249
(Plenum Press, New York , 1978)
- 2 D.F. WALLS J. Phys. B 13 2001 (1980)
- 3 S.J. KILIN J. Phys. B 13 2653 (1980)
S.J. KILIN Zh. Eksj Teor. Fiz. 78 2157 (1980)
- 4 M. KUS et K. WODKIEWICZ Phys. Rev. A 23 853 (1981)

B LA SPECTROSCOPIE SUB DOPPLER EN PHASE VAPEUR

Ba Spectroscopie laser : recueils généraux

- 1 Fundamental and Applied Laser Physics éditeurs M. FELD, A. JAVAN and N.A. KURNIT (Wiley , 1971)
- 2 Laser Spectroscopy , ed. S. HAROCHE, J.C. PEBAY-PEYROULA , T.W. HÄNSCH and S.E. HARRIS (Berlin, Springer , 1975)

- 3 Frontiers in Laser Spectroscopy , Proceedings Les Houches XXVII, ed. R. BALIAN, S. HAROCHE and S. LIBERMAN (North Holland, Amsterdam, 1977)
- 4 Laser Spectroscopy III, ed. J.L. HALL and J.L. CARLSTEN (Berlin, Springer , 1977)
- 5 Laser Spectroscopy IV, ed. H. WALTHER and K.W. ROTHE (Berlin, Springer, 1979).
- 6 M.S. FELD et V.S. LETOKHOV Scientific American 229 69 (Dec. 1973)

Bb Absorption saturée et développements récents

- 1 S. HAROCHE and F. HARTMANN, Phys. Rev. A6, 1280 (1972)
- 2 V.S. LETOKHOV, High Resolution Spectroscopy , ed. K. SHIMODA (Berlin, Springer, 1976)
V.S. LETOKHOV and V.P. CHEBOTAYEV, Non Linear Laser Spectroscopy (Berlin, Springer, 1978), and references in
- 3 E. ARIMONDO and P. GLORIEUX , Phys. Rev. A 19 , 1067 (1979)
I. COLOMB and M. DUMONT , Opt. Commun. 21 , 143 (1977)
C. DELSART and J.C. KELLER , in Ba 4
C.J. BORDE , in Ba 4
M. PINARD , C.G. AMINOFF and F. LALOE , Phys. Rev. A (1979)
- 4 C. WIEMAN and T.W. HANSCH , Phys. Rev. Lett. 36 , 1170 (1976), and in Ba 4
I.R. BONILLA, W. DEMTRODER, F. PACK and R. SCHMIEDLIN, in Ba 4
I.I. SONG, J.H. LEE and M.D. LEVENSON, in Ba 4.

Bc Spectroscopie sans effet Doppler par processus multiphotoniques

- 1 L.S. VASILENKO , V.P. CHEBOTAYEV and A.V. SHISHAEV, Sov. Phys. JETP Lett. 12 113 (1970)
- 2 B. CAGNAC , G. GRYNBERG , F. BIRABEN, J. de Phys. 34 , 845 (1973)
- 3 F. BIRABEN, B. CAGNAC, G. GRYNBERG , Phys. Rev. Lett. 32 , 643 (1973)
- 4 M.D. LEVENSON and N. BLOEMBERGEN, Phys. Rev. Lett. 32 645 (1973)
and in High Resolution Spectroscopy, ed. K. SHIMODA (Berlin, Springer, 1976)
- 5 G. GRYNBERG and B. CAGNAC , Rep. on Progress in Physics, 40 , 791 (1977)
- 6 P.F. LIAO and J.E. BJORKHOLM, Phys. Rev. Lett. 34 , 1 (1975)

Bd Fluorescence Line Narrowing . Absorption Line Narrowing

- 1 T.W. DUCAS, M.S. FELD, L.W. RYAN, N. SKRIBANOWITZ and A. JAVAN, Phys. Rev. A5, 1036 (1972)
- 2 M.S. FELD in Ba 1
- 3 B.J. FELDMAN and M.S. FELD , Phys. Rev. A5, 889 (1972)
- 4 J.C. KELLER , Thèse d'Etat (Paris, Orsay , 1978) and references in.
- 5 M.S. FELD et A. JAVAN Phys. Rev. 177 540 (1969)

Be Effet Autler Townes optique

- 1 S.H. AUTLER et C.H. TOWNES Phys. Rev. 100 703 (1955)
- 2 Observation du doublet Autler Townes sur jet atomique
J.L. PICQUE and J. PINARD, J. Phys. B9, L 77 (1976)
J.E. BJORKHOLM and P.F. LIAO, Opt. Commun. 21 , 132 (1977)
- 3 Observation de l'effet Autler Townes optique en vapeur
C. DELSART and J.C. KELLER, Opt. Commun. 16 , 388 (1976)
and J. Phys. B9, 2769 (1976) and J. de Physique , 39 , 350 (1978)
voir aussi Bd 4.
P. CAHUZAC and R. VETTER, Phys. Rev. A 24 , 270 (1976)
A. SHABERT, R. KEIL and P.E. TOSCHEK, Appl. Phys. 6 , 181 (1975) and
Opt. Commun. 13 , 165 (1975)
- 4 Calculs théoriques
B.J. FELDMAN et M.S. FELD - Phys. Rev. A 1 , 1375 (1970) voir aussi Bd 3, Bd 5
B.R. MOLLOW - Phys. Rev. A 5 , 1522 (1972)
I.M. BETEROV and V.P. CHEBOTAYEV , Progress in Quantum Electronics
Vol 3, ed. J.H. SANDERS and STENHOLM (Pergamon Press, 1974)
S. FENEUILLE and M.G. SCHWEIGHOFER , J. de Physique, 36 , 781 (1975)
N. SKRIBANOWITZ , M.S. KELLY et M.S. FELD Phys. Rev. A 6 2302 (1972)

Bf Compensation de l'effet Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse .

- 1 Utilisation des diagrammes de fréquences
C. COHEN-TANNOUDJI Metrologia 13, 161 (1977)
C. COHEN-TANNOUDJI, F. HOFFBECK, S. REYNAUD, Opt. Commun. 27 71 (1978)
F. HOFFBECK, Thèse de 3ème cycle (Paris 1978)
La notion de diagramme de fréquence peut être introduite dans le cadre semi-classique , voir J.N. DODD and G.W. SERIES, Proc . Roy. Soc. London, Ser. A263 353 (1961)
- 2 Observation de l'effet
S. REYNAUD, M. HIMBERT , J. DUPONT-ROC, H.H. STROKE and C. COHEN-TANNOUDJI
Phys. Rev. Lett. 42, 756 (1979)
S. REYNAUD, M. HIMBERT, J. DUPONT-ROC and C. COHEN-TANNOUDJI , In Ba 5
M. HIMBERT Thèse de 3ème cycle Paris 1978
- 3 Application de l'effet de compensation
G. PETITE, B.C. JOHNSON, W.K.H. LANGE et M.M. SALOUR
Phys. Rev. Lett. 45 1242 (1980)
M.M. SALOUR et G. PETITE Preprint "Light Induced Unidirectional Light Switching"
- 4 Le lien entre déplacements lumineux et structures étroites en spectroscopie laser de haute résolution de systèmes à trois niveaux est étudié par
P.E. TOSCHEK in Ba 3.

C L'EFFET DES COLLISIONS

Ca Références générales

De nombreuses références peuvent être trouvées dans

- 1 P.R. BERMAN Appl. Phys. 6, 283 (1975)
2. R. VETTER Annales de Physique, 5 181 (1980)

- 3 R. VETTER et P.R. BERMAN Comments on Atom. and Molec. Phys. (1981)

Cb Etude expérimentale de la redistribution collisionnelle

J.L. CARLSTEN, A. SZOKE et M.G. RAYMER Phys. Rev. A15 1029 (1977)

Cc Etude théorique du spectre de redistribution

- 1 Dans le régime d'impact et sans effet de saturation
D.L. HUBER Phys. Rev. 178 93 (1969)
A. OMONT, E.W. SMITH, J. COOPER. Astrophys. J. 175 185 (1972)
- 2 Non limités au régime d'impact mais sans effet de saturation
G. NIENHUIS et F. SCHULLER Physica 92C 397, 409 (1977)
J. COOPER Astrophys. J. 228 339 (1979)
J. COOPER in "Laser Physics" éditeurs D.F. WALLS et J.D. HARVEY
(Academic Press, Sydney, 1980)
- 3 Traitements incluant les effets de saturation
B.R. MOLLOW Phys. Rev. A 15 1023 (1977)
E. COURTENS et A. SZOKE Phys. Rev. A 15 1588 (1977)
G. NIENHUIS et F. SCHULLER J. Phys. B 12, 3473 (1979)
J. FIUTAK et J. VAN KRANENDONK J. Phys. B 13, 2869 (1980)
Y. RABIN et A. BEN-REUVEN J. Phys. B 13, 2011 (1980)

Cd Etude de la redistribution par le calcul ab initio de la matrice de collision

Avec nos notations, ces papiers sont consacrés au calcul de w .

- 1 V.S. LISITSA et S.I. YAKOVLENKO JETP 41 233 (1975)
(Zh. Éksp. Teor. Fiz. 68, 479 (1975)).
- 2 S. YEH et P.R. BERMAN Phys. Rev. A 19, 1106 (1979)

Ce Redistribution de polarisation

Voir par exemple P. THOMANN, K. BURNETT et J. COOPER Phys. Rev. Lett. 45 1325 (1980)

D REFERENCES DIVERSES

Da Représentation du spin fictif. Equations de Bloch optiques

- 1 F. BLOCH Phys. Rev. 105 1206 (1957)
- 2 A. ABRAGAM- The Principles of Nuclear Magnetism (1961, London, Oxford University Press).
- 3 C. COHEN-TANNOUDJI, B. DIU, F. LALOË- Cours de Mécanique Quantique, Complément C-IV (1973, Paris, Herman)
- 4 Voir aussi Ab 23, Ab 24 et Ah 1

Db Etats cohérents

- 1 R.J. GLAUBER Référence Dg 1
- 2 C. COHEN-TANNOUDJI Cours au Collège de France (1974-1975)
Voir aussi Da 3 Complément GV.

Dc Amortissement de la précession de Rabi du à la dispersion de $\sqrt{n}$

A. FAIST, E. GENEUX, P. MEYSTRE et A. QUATTROPANI
Helv. Phys. Acta 45 956 (1972)

Dd Cascades radiatives atomiques et nucléaires

- 1 A.M. DUMONT, C. CAMHY-VAL, M. DREUX et R. VITRY
C.R. Acad. Sci. 271 B 1021 (1970)
- 2 M. POPP, G. SCHAFER et E. BODENSTEDT Z. Phys. 240, 71 (1970)
- 3 R.M. STEFFEN et H. FRAUENFELDER in "Perturbed Angular Correlations"
éditeurs E. KARLSSON, MATTHIAS et K. SIEGBAHN
(North Holland, Amsterdam 1964)
- 4 M.I. PODGORETSKII, O.A. KHRUSTALEV Sov. Phys. Uspekhi 6 682 (1964)

De Théorie de la relaxation

- 1 W.H. LOUISELL-Quantum Statistical Properties of Radiation (John Wiley, New York, 1973).
- 2 G.S. AGARWAL - Quantum Statistical theories of Spontaneous Emission and their Relation to other Approaches, Springer Tracts in Modern Physics, 1974, Vol 70.
- 3 C. COHEN-TANNOUDJI Cours au Collège de France (1975-1976)

Df Emission spontanée de l'oscillateur harmonique

- 1 N. KROLL - Quantum theory of Radiation, in les Houches 1964, Quantum Optics and Electronics, edited by C. DE WITT, A. BLANDIN and C. COHEN-TANNOUDJI (Gordon and Breach, 1965)
- 2 C. COHEN-TANNOUDJI - Cours de Physique atomique et moléculaire, Collège de France (année 1975-1976) ; voir aussi Ab 24.

Dg Expression des signaux de fluorescence

- 1 R.J. GLAUBER in Les Houches 1964 même référence que Df 1
- 2 B.R. MOLLOW J. Phys. A8 L 130 (1975) voir aussi Ad 6.

Dh Théorème de régression quantique

M. LAX Phys. Rev. 172 350 (1968)

M. LAX - Fluctuation and Coherence Phenomena in Classical and Quantum Physics, in Brandeis University Summer Institute Lectures, Vol II. edited by M. CHRETIEN E.P. GROSS and S. DESER (Gordon and Breach, 1966)

Voir aussi les références de la rubrique De, Ab 6, Ab 24 et Ah 1.

Di Atome habillé dans le domaine des radiofréquences

- 1 C. COHEN-TANNOUDJI - Optical Pumping and Interaction of Atoms with the Electromagnetic Fields, in Cargèse Lectures in Physics, edited by M. LEVY, Vol 2 (Gordon and Breach, 1968)
C. COHEN-TANNOUDJI and S. HAROCHE - J. Phys. 30, 125 and 153 (1969)
S. HAROCHE Thèse d'Etat, Annales de Phys. 6, 189-387 (1971, Paris Masson)
C. COHEN-TANNOUDJI et S. HAROCHE - dans "Polarisation, Matière et Rayonnement", Livre de Jubilé en l'honneur de A. KASTLER, édité par la Société Française de Physique (1969, Paris, PUF)
- 2 C. COHEN-TANNOUDJI et S. HAROCHE - C.R. Acad. Sci. 262 B, 268 (1966)
S. HAROCHE, C. COHEN-TANNOUDJI, C. AUDOIN et J.P. SCHERMANN - Phys. Rev. Lett. 24, 816 (1970)
S. HAROCHE et C. COHEN-TANNOUDJI - Phys. Rev. Lett. 24, 974 (1970)
- 3 Méthodes voisines de la méthode de l'atome habillé
J.H. SHIRLEY - Phys. Rev. 138, 4B, 979 (1965)
Ya.B. ZEL'DOVICH - Sov. Phys. Usp. 16, 427 (1974) (Usp. Fiz. Nauk 110, 139 (1973)).
V.L. DERBOV, M.A. KOVNER and S.K. POTAPOV - Sov. J. Quantum Electron. 5, 379 (1975).

Dj Déplacements lumineux

- 1 J.P. BARRAT and C. COHEN-TANNOUDJI, J. Phys. Rad. 22, 329, 443 (1961)
- 2 C. COHEN-TANNOUDJI, Ann. Phys. 7, 423, 469 (1962)
- 3 C. COHEN-TANNOUDJI and J. DUPONT-ROC, Phys. Rev. A5, 968 (1962) and references in.
- 4 A.M. BONCH-BRUEVICH, N.N. KOSTIN, V.A. KHODOVOI and V.V. KHROMOV, Sov. Phys. JETP, 29, 82 (1969)
- 5 P. PLATZ, Appl. Phys. Lett. 14, 168 (1969) and 16, 70 (1970)
- 6 R. DUBREUIL, P. RANSON and J. CHAPELLE, Phys. Lett. 42A, 323 (1972)
- 7 Le lien entre les déplacements lumineux et l'effet Autler Townes est discuté dans
A.M. BONCH-BRUEVICH et V.A. KHODOVOI Sov. Phys. Usp. 10, 637 (1968)
C. COHEN-TANNOUDJI et S. HAROCHE dans Polarisation, Matière et Rayonnement, ed. Société Française de Physique (P.U.F. Paris 1969).

Dk Groupement des photons émis par une source ordinaire

R. HANBURY-BROWN et R.Q. TWISS , Nature 177 27 (1956)
Proc. Roy. Soc. London 242 A , 300 (1956) et 243 A 291 (1957)

Voir aussi la référence Ad 6.

Dl Observation de l'oscillation de Rabi dans des "transitoires cohérentes"

Voir par exemple R.G. BREWER in Ba 3

L'oscillation de Rabi a été observée récemment sur un signal de fluorescence lui même

W.R. Mac Gillivray et M.C. STANDAGE Optics Comm. 36 , 189 (1981)

Dm Autres méthodes susceptibles de créer des déplacements dépendant de la vitesse

D.M. LARSEN, Phys. Rev. Lett. 39, 878 (1977)

R. ROMESTAIN , S. GESCHWIND and G.E. DERLIN, Phys. Rev. Lett. 39 , 1583 (1977)

Dn Références de la partie expérimentale

1 Etude de la cavité repliée du laser à colorant

H.W. KOEGLNIK, E.P. IPPEN, A. DIENES et C.V. SHANK
IEEE J. of Quantum Electronics QE 8 373 (1972)

Voir aussi pour les propriétés des faisceaux laser

H.W. HOGELNIK et T. LI Applied Optics 5 1550 (1966)

A.E. SIEGMAN "An Introduction to Lasers and Masers" p. 293 (Mc Graw Hill)

2 Propriétés du Fabry Pérot sphérique confocal

P. CONNES J. Phys. Rad. 19 , 262 (1958)

M. HERCHER Applied Optics 7 951 (1968)

3 Laser He-Ne à 1,152 μ

A. JAVAN , W.R. BENNETT Jr et D.R. HERRIOT Phys. Rev. Lett. 6 106 (1961)

W.R. BENNETT Jr Applied Optics Supplément 1 "Optical Masers" 24 (1962)

A.D. WHITE et E.I. GORDON Applied Phys. Lett. 3 , 197 (1963)

E.I. GORDON et A.D. WHITE Applied Phys. Lett. 3 , 199 (1963)

4 Fonctionnement monomode d'un laser He Ne par la technique de l'absorbant saturable.

V.P. CHEBOTAIEV, I.M. BETEROV et V.N. LISITSYN IEEE J. of Quantum Electronics QE 4 788 (1968)

P.H. LEE, P.B. SCHOEFER et W.B. BARKER Appl. Phys. Lett. 13 373 (1968)

M.S. FELD, A. JAVAN et P.H. LEE Appl. Phys. Lett. 13 424 (1968)

W.R. BENNETT Jr Comments on Atom and Molec. Phys. 11 10 (1970)

P.W. SMITH Proceedings of the IEEE 60 422 (1972)

voir aussi Bd 1 et Bd 4

5 Lasers à Flashes

G.M. GALE, Opt. Commun. 7 , 86 (1973)

F. TREHIN , G. GRYNBERG, B. CAGNAC, Rev. Phys. Appliquée, 13 , 307 (1978)

F. TREHIN, Thèse de Docteur-Ingénieur (Paris , 1979)

Dp Propriétés des fonctions d'erreur à arguments complexes

Voir par exemple "Hand book of Mathematical Functions" ed. M. ABRAMOWITZ et I.A. STEGUN (Dover, New York) Chapitre 7.

Dq Piégeage et refroidissement radiatif

A. ASHKIN Science 210 1081 (1980)

Dr Utilisation de l'atome habillé en optique non linéaire

G. GRYNBERG "Résonances between unpopulated levels in non linear optics" to be published in J. Phys. B (1981)