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

A - Introduction

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

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

Problèmes à résoudre

(i) Description quantitative de l'évolution de l'atome.

(ii) Détermination quantitative des caractéristiques de la lumière émise ou absorbée : intensité, polarisation, répartition spectrale, statistique des photons ...

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

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

Les 2 points de vue possibles.

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

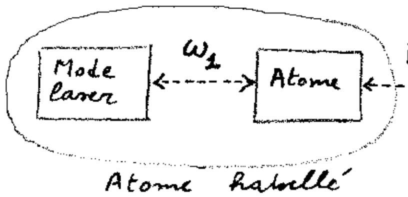


Fig 1 : Point de vue entièrement quantique

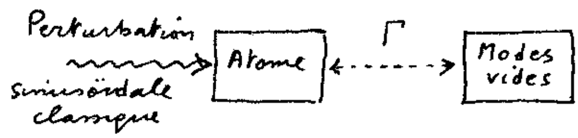


Fig. 2 : Point de vue semi-classique

Description par opérateur densité. Equation pilote.

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

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

Deux cas limites intéressants

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

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

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

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

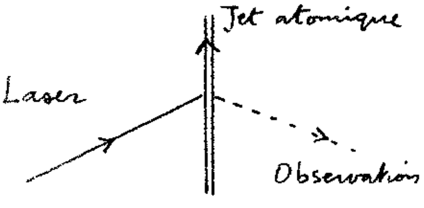
But de ce chapitre

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

Hypothèses

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

Fig. 3



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

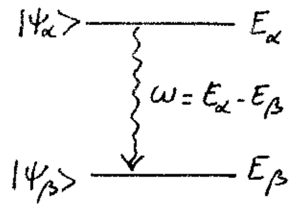
Nous aborderons ultérieurement l'étude des effets nouveaux observables dans une vapeur, après avoir effectué la moyenne sur les vitesses conformément à la méthode de résolution graphique exposée page II-9.
En d'autres termes, on considèrera soit des atomes immobiles, soit une classe de vitesses.

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

B — Les fréquences émises en présence de l'irradiation laser

① Comment trouver les fréquences émises spontanément ?

- En l'absence d'émission spontanée, les états $|\Psi_\alpha\rangle$ de l'atome habillé, d'énergie E_α, sont des états stationnaires.
- Le couplage avec les modes vides va provoquer des transitions entre ces états : transitions d'un état $|\Psi_\alpha\rangle$ vers un état inférieur $|\Psi_\beta\rangle$ avec émission d'un photon de fréquence $\omega = E_\alpha - E_\beta$.



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

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

② Eléments de matrice de l'opérateur dipole électrique D.

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

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

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

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

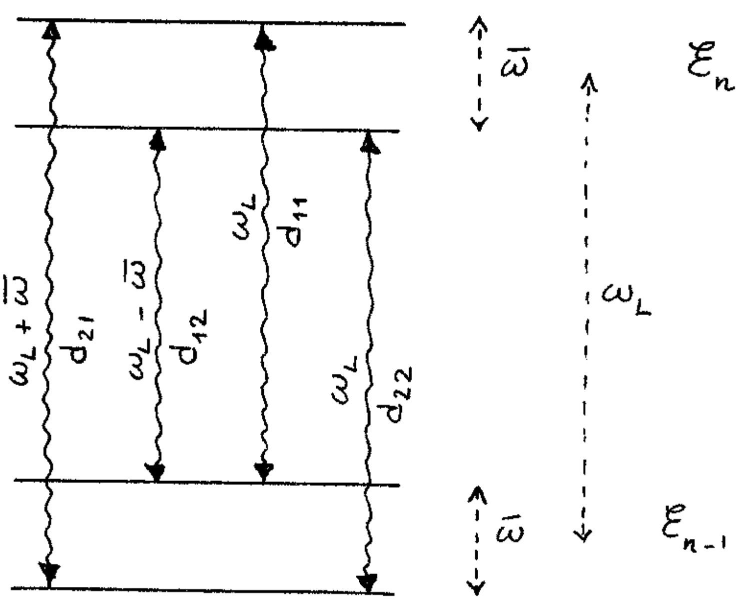


Fig. 4

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

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

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

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

- Les seuls éléments de matrice non nuls de D relient un état de $\mathcal{E}_n$ à un état de $\mathcal{E}_{n-1}$ ou $\mathcal{E}_{n+1}$ (D relie a à b, b à a et ne change pas n).

Les 4 éléments de matrice de D entre un état de $\mathcal{E}_n$ et un état de $\mathcal{E}_{n-1}$ correspondent aux 4 transitions représentées par les lignes ondulées verticales de la figure 4.

Si l'on pose

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

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

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

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

- Remarque : si l'on ne fait pas l'approximation r.w.a (et si l'on tient compte des autres niveaux atomiques non couplés de manière résonnante au laser), on trouve que D a d'autres éléments de matrice entre $\mathcal{E}_n$ et $\mathcal{E}_{n\pm3}$, $\mathcal{E}_{n\pm5}$ ... (génération d'harmonique) les ~~pairs~~ harmoniques paires sont exclues pour des raisons de parité

③ Le triplet de fluorescence.

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

④ Interprétation perturbative à la limite des grands désaccords

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

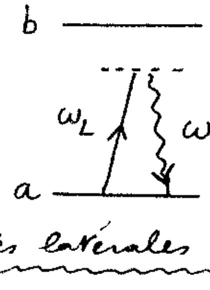
$$\bar{\omega} \simeq |\delta| \qquad (VIII-6)$$

et les 3 fréquences du triplet deviennent égales à

$$\omega_L \ , \ \omega_0 \ , \ 2\omega_L - \omega_0 \qquad (VIII-7)$$

- Raie centrale ω_L

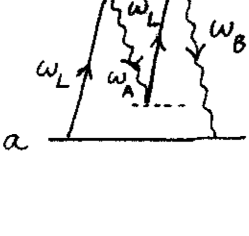
Fig. 5



Diffusion Rayleigh élastique
$\omega = \omega_L$

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

Fig. 6



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

$$\omega_A + \omega_B = 2\omega_L \qquad (VIII-8)$$

Les 2 photons ω_A et ω_B sont donc très corrélés.

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

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

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

(5) Nécessité d'un traitement plus précis.

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

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

$$|a,n+1\rangle \quad \xleftrightarrow{\ \omega_1/2\ } \quad |b,n\rangle$$

Il faut donc diagonaliser la matrice 2×2 non hermitique

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

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

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

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

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

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

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

① Equation pilote décrivant l'émission spontanée de l'atome "nu" (voir cours 75-76)

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

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

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

Expression de Γ

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

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

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

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

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

Forme opératorielle de l'équation pilote.

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

$$\Gamma \ll \omega_0 , \omega_L \qquad (\text{VIII-17})$$

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

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

– Discussion dans l'espace des temps.

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

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

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

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

- Discussion dans l'espace des fréquences

Dans l'interaction atome mi-vide, la seule fréquence de Bohr qui intervient pour le dipôle D est la fréquence atomique ω_0.

L'interaction atome-laser fait apparaître 3 fréquences de Bohr dans le mouvement de D : ω_L, $\omega_L+\bar{\omega}$, $\omega_L-\bar{\omega}$, qui sont de l'ordre de ω_L, $\omega_L+\omega_1$, $\omega_L-\omega_1$ à résonance, ω_L, ω_0, $2\omega_L-\omega_0$ hors résonance.

Vis à vis de l'interaction atome-laser, l'interaction avec les fluctuations du vide pourra être considérée comme ayant un temps de corrélation suffisamment court, c-à-d un spectre suffisamment "blanc", si la densité spectrale de ces fluctuations (qui varie en ω^3) a à peu près la même valeur pour ces 3 fréquences : $(\omega_L)^3 \simeq (\omega_L+\bar{\omega})^3 \simeq (\omega_L-\bar{\omega})^3$.

Compte tenu de l'expression de $\bar{\omega}$, on en déduit la condition de validité de l'approximation des vitesses de variation indépendantes :

$$\omega_1 \,,\; |\omega_L-\omega_0| \ll \omega_0 \qquad (\text{VIII-18})$$

- Conséquences sur la forme mathématique de l'équation pilote

Si l'on peut négliger l'interaction atome-laser pendant le temps τ_c, les nombres quantiques relatifs aux photons laser restent "spectateurs" dans l'équation pilote écrite dans la base non-perturbée $\{|a,n\rangle, |b,n\rangle\}$. Par exemple, à partir de (VIII-11-c), on obtient :

$$\frac{d}{dt}\langle a,n|\sigma|b,n'\rangle = -\frac{\Gamma}{2}\langle a,n|\sigma|b,n'\rangle \qquad (\text{VIII-19})$$

Comme les opérateurs D^+, D^- n'agissent pas sur n, n', l'équation opératorielle VIII-14 demeure valable, σ étant cependant un opérateur de $\mathcal{E}_A \otimes \mathcal{E}_R$ (au lieu de $\mathcal{E}_A$ seulement), et on peut projeter cette équation soit sur la base non-perturbée $\{|a,n\rangle, |b,n\rangle\}$ soit sur la base perturbée $\{|1,n\rangle, |2,n\rangle\}$.

Le couplage atome-laser se retrouve bien sur dans le terme d'évolution propre qui, au lieu de H_A, fait intervenir l'hamiltonien total

$$H = H_A + H_R + V \qquad (\text{VIII-20})$$

de l'atome habillé.

Si les conditions (VIII-18) sont remplies, l'équation pilote de l'atome habillé s'écrit donc :

$$\frac{d}{dt}\sigma = \{D^+D^-, \sigma\}_+ + D^-\sigma D^+ - i[H,\sigma] \qquad (\text{VIII-21})$$

On peut donc, lorsque les conditions (VIII-18) sont remplies, ajouter indépendamment les termes décrivant l'émission spontanée, calculés comme si le couplage atome-laser était nul, et ceux décrivant l'interaction atome-laser.

Si les conditions (VIII-18) n'étaient pas remplies, il serait toujours possible d'écrire une équation pilote, mais les termes décrivant l'émission spontanée seraient moins simples que les 1er et 2ème termes de (VIII-21). En particulier, ils dépendraient de ω_1 et $\omega_L - \omega_0$.

Remarques

- Dans l'approche semi-classique, on ajoute souvent indépendamment les termes d'émission spontanée (VIII-11) et ceux décrivant l'interaction avec l'onde laser classique. Il ressort de ce qui précède, qu'il s'agit là d'une approximation qui n'est pas toujours forcément valable.
- les conditions de validité (VIII-18) sont identiques à celle de l'approximation r.w.a. et à celle qui permettent de se limiter à 2 niveaux.

(iii) Approximation séculaire.

- Supposons l'équation pilote écrite dans la base des états propres de l'hamiltonien H de l'atome habillé.

On peut négliger le couplage entre 2 éléments de matrice densité si la ~~frequ~~ différence entre les fréquences d'évolution propre correspondantes est suffisamment grande par rapport au coefficient de couplage, de l'ordre de Γ.

Ainsi, si

$$\bar{\omega} = \sqrt{\omega_1^2 + \delta^2} \gg \Gamma \qquad \text{(VIII-22)}$$

on peut négliger :

× les couplages entre populations $\langle i,n|\sigma|i,n\rangle$ $(i=1,2)$, dont la fréquence d'évolution est 0, et les cohérences basse fréquence $\langle 1,n|\sigma|2,n\rangle$ (fréquence d'évolution $\bar{\omega}$). Les populations ne sont alors couplées qu'entre elles, ce qui simplifie beaucoup l'interprétation physique.

× les couplages entre cohérences optiques évoluant à ω_L, $\omega_L+\bar{\omega}$, $\omega_L-\bar{\omega}$.

- D'après (VIII-22), l'approximation séculaire est valable lorsque les 3 composantes du triplet de fluorescence sont suffisamment bien séparées par rapport à Γ, ce qui se produit soit en champs intenses ($\omega_1 \gg \Gamma$), soit suffisamment hors résonance ($|\omega_0-\omega_L| \gg \Gamma$)
- les 2 approximations (ii) et iii) sont indépendantes. Si $|\omega_0-\omega_L|$ est grand devant Γ et non négligeable devant ω_0, on peut faire l'approximation séculaire, mais non l'approximation des vitesses de variation indépendantes (Si $\omega_1 \ll |\omega_0-\omega_L|$, il est d'ailleurs plus simple dans ce cas de faire un calcul perturbatif).

En conclusion,

1 - On peut toujours écrire une équation pilote pour décrire l'évolution de l'atome habillé en présence d'émission spontanée (VIII-17 est toujours vérifiée).

2 - Pour des champs laser non ultra-intenses et pour des désaccords pas trop grands (condition VIII-18), cette équation pilote se simplifie : on peut ajouter indépendamment les termes d'émission spontanée, calculés comme si l'interaction atome-laser était nulle, et ceux décrivant l'interaction atome-laser.

3 - Lorsque la largeur naturelle Γ est suffisamment petite devant ω_1 ou δ (condition VIII-22), on peut négliger les couplages non séculaires associés à l'émission spontanée, ce qui simplifie les calculs et les discussions physiques.