

Résumé du cours 1976-77

Le cours de cette année a porté sur l'étude des interactions résonnantes ou quasi-résonnantes d'un atome ou d'une molécule avec une ou plusieurs ondes électromagnétiques intenses.

1) Après un bref rappel des résultats établis au cours de l'année antérieure et une présentation générale des problèmes ~~qui~~ abordés cette année, ainsi que des motivations qui ont guidé un tel choix, on a commencé par présenter un traitement entièrement quantique de l'interaction entre un système à 2 niveaux et un mode de champ électromagnétique, les couplages dissipatifs avec le milieu environnant (émission spontanée, collisions...) étant, dans une première étape, négligés. On s'intéresse donc à l'atome « habillé » (par les photons du mode avec lequel il interagit), non couplé au milieu extérieur.

On introduit ainsi dès le début du cours les paramètres physiques fondamentaux, en particulier la fréquence de Rabi ω_1 qui caractérise l'oscillation de l'atome entre les 2 états d'énergie sous l'effet du couplage avec l'onde incidente, et on discute les conditions de validité des approximations généralement effectuées dans ce genre de problèmes : approximation à 2 niveaux, approximation du champ tournant, effet des fluctuations quantiques de l'amplitude du champ électrique de l'onde incidente.

A partir de l'expression de l'hamiltonien du système global, on discute ensuite en détail diverses représentations possibles du diagramme d'énergie de l'atome habillé qui seront utiles pour les discussions physiques ultérieures. On montre en particulier comment on peut introduire simplement l'effet Doppler sur ces diagrammes.

2) Comme première application du formalisme précédent, on procède, à partir de ce point de vue, à un rapide survol de la spectroscopie hertzienne. Dans ce domaine de fréquences, il est en effet tout à fait légitime de négliger l'émission spontanée et l'effet Doppler, ce qui simplifie beaucoup les calculs.

En illustrant la discussion par la description d'un certain nombre d'expériences, on présente une interprétation synthétique de divers effets importants de la spectroscopie hertzienne : résonance magnétique ordinaire, balayage adiabatique rapide, effet Autler-Townes, transitions à plusieurs quanta, déplacements radiatifs du type Bloch-Siegert, résonances de cohérence, modification des propriétés magnétiques d'un atome par couplage avec un champ de radiofréquence non résonnant.

L'accent est mis sur les simplifications conceptuelles introduites par le formalisme de l'atome habillé : existence d'un hamiltonien indépendant du temps, ce qui permet de généraliser les avantages du référentiel tournant à des polarisations quelconques de la radiofréquence ; vision globale des diverses résonances observables qui sont reliées à des croisements ou anticroisements apparaissant sur le diagramme d'énergie de l'atome habillé ; interprétation corpusculaire et calcul simple des effets d'ordre supérieur ; compréhension qualitative des phénomènes dans des domaines où aucun calcul perturbatif n'est possible.

3) Avant de passer à l'étude de la spectroscopie optique, il a paru intéressant d'analyser les liens existant entre l'approche entièrement quantique introduite plus haut et de nombreux autres traitements « semi-classiques », où le champ électromagnétique n'est pas quantifié.

On montre d'abord comment les résonances à plusieurs quanta et les résonances de cohérence peuvent être interprétées à partir d'une résolution itérative des équations de Bloch semi-classiques du système. Un double développement des divers éléments de la matrice densité atomique, en série de Fourier d'une part, en puissances du champ électromagnétique d'autre part, permet d'interpréter les résonances en termes de processus faisant intervenir un nombre de plus en plus grand d'interactions avec l'onde incidente. Un tel calcul perturbatif est cependant mal adapté à l'étude des élargissements et déplacements radiatifs.

Cet inconvénient est évité par une résolution directe des équations de récurrence reliant les diverses composantes de Fourier de la matrice densité atomique, en termes de fractions continues. Si l'interprétation physique des expressions obtenues est moins simple, on peut, en tronquant la fraction continue à un ordre donné, obtenir des expressions analytiques reproduisant de manière très précise les formes de raies et bien adaptées au calcul sur ordinateur.

On présente ensuite une approche du problème, basée sur les symétries de l'hamiltonien, à savoir sa périodicité temporelle. On établit l'existence d'un ensemble complet de solutions de l'équation de Schrödinger, rappelant par certains côtés les fonctions de Bloch de la physique des solides (qui sont bien adaptées à la périodicité spatiale du potentiel cristallin). On montre que pour obtenir ces solutions particulières de l'équation de Schrödinger, on est amené à diagonaliser un hamiltonien de dimension infinie, l'hamiltonien de Floquet-Shirley, très voisin de l'hamiltonien de l'atome habillé.

On aborde enfin le problème général de la validité des traitements semi-classiques utilisant une perturbation dépendant du temps dans l'équation de Schrödinger. Il est bien connu en effet que, lorsque 2 systèmes interagissent (ici l'atome et le rayonnement), il apparaît des corrélations entre eux, de sorte

que l'état de chaque système ne peut plus en général être décrit par un vecteur d'état. Or, dans les approches semi-classiques, l'état de l'atome demeure à chaque instant, décrit par un vecteur d'état solution d'une équation de Schrödinger dépendant du temps. A partir de l'approche entièrement quantique, on établit, par 2 méthodes différentes, que la factorisation du vecteur d'état global en un vecteur atomique et un vecteur de rayonnement ne peut subsister au cours du temps que si deux conditions sont remplies : tout d'abord, l'état initial du champ doit être quasi-classique ; ensuite, l'effet de l'émission spontanée doit pouvoir être négligé pendant le temps d'observation.

4) C'est précisément à l'étude du domaine optique, où l'émission spontanée joue un rôle important, qu'est consacré le reste du cours. L'émission spontanée est en particulier à l'origine du phénomène de fluorescence de résonance, c'est-à-dire de l'émission spontanée de rayonnement par un atome excité par une onde incidente résonnante. Le développement spectaculaire des lasers à colorant accordables a permis récemment d'étudier de manière très précise la fluorescence de résonance d'atomes excités par des rayonnements laser intenses, et l'un des buts essentiels du cours a été de présenter, à partir du point de vue de l'atome habillé, une interprétation à la fois simple et quantitative des phénomènes observés.

En associant les fréquences émises aux fréquences de Bohr permises apparaissant dans le diagramme de l'atome habillé, on a montré tout d'abord l'origine de la structure en triplet du spectre de fluorescence. Pour calculer les poids et largeurs des trois composantes de ce spectre, une description plus précise, en termes d'équation pilote, s'impose. On discute en détail les conditions de validité d'une telle équation pilote. Elles reposent essentiellement sur la brièveté du temps de corrélation des fluctuations du vide responsables de l'émission spontanée. On montre également qu'en champ résonnant intense, lorsque la fréquence de Rabi ω_1 est grande devant la largeur naturelle Γ des niveaux atomiques, il est légitime de négliger le couplage entre éléments de matrice densité évoluant à des fréquences différentes (approximation séculaire), ce qui permet de simplifier considérablement l'équation pilote.

Les équations d'évolution des populations des niveaux d'énergie de l'atome habillé sont alors explicitées. Elles expriment simplement que la population d'un niveau croît par suite de transitions spontanées qui l'alimentent à partir des niveaux supérieurs, et décroît par suite de transitions spontanées vers les niveaux inférieurs. Ces équations sont aisément résolues en tenant compte du caractère quasi-classique du champ. On en déduit plusieurs résultats physiques importants : valeur moyenne et écart quadratique moyen du nombre de photon émis par un atome pendant le temps T de traversée du faisceau laser par cet atome ; poids des diverses composantes du spectre de fluorescence

qui sont égaux aux nombres de transitions de l'atome habillé s'effectuant à la fréquence correspondante pendant le temps T .

On s'intéresse ensuite à l'évolution des éléments non-diagonaux de la matrice densité. Comme le diagramme d'énergie de l'atome habillé a une structure périodique, il est nécessaire de tenir compte des couplages introduits par l'émission spontanée entre éléments non diagonaux évoluant à la même fréquence. On montre que ces couplages sont importants car ils modifient de manière appréciable les constantes de temps d'amortissement des diverses composantes de fréquence du dipôle atomique. En prenant l'inverse de ces constantes de temps, on obtient des expressions explicites pour les largeurs des diverses composantes du spectre de fluorescence.

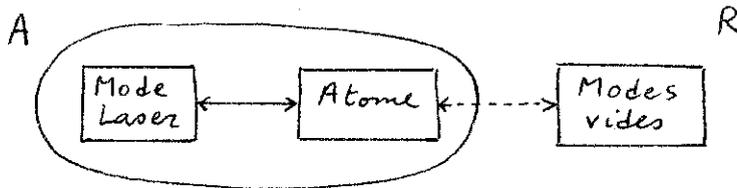
5) On aborde enfin la description, dans le même cadre théorique, de l'effet des collisions que peuvent éventuellement subir les atomes irradiés par le laser résonnant.

On s'attache tout d'abord à établir la structure de l'équation pilote décrivant l'effet des collisions à la limite d'impact. Une telle limite correspond à un temps de collision τ_C très court devant la période de Rabi $1/\omega_1$ et devant l'inverse du désaccord $|\omega_L - \omega_0|$ entre la fréquence du laser ω_L et la fréquence atomique ω_0 . L'idée physique développée est que le temps de collision τ_C est si court que le couplage atome-laser n'a pas le temps de se manifester pendant τ_C . L'effet d'une collision élémentaire peut donc se calculer comme si l'atome n'était pas irradié par le laser. Bien sûr, entre deux collisions, l'atome et le laser ont le temps de se coupler, et c'est ce qui impose d'utiliser la base de l'atome habillé. Les termes nouveaux liés à la présence des collisions sont calculés à partir de ce changement de base et interprétés physiquement. On montre en particulier comment ils permettent de comprendre la « fluorescence assistée par collisions », processus responsable de l'apparition de dissymétries dans le spectre de fluorescence et qui a fait l'objet d'études expérimentales récentes.

Lorsque le temps de collision τ_C ne peut plus être négligé devant $1/\omega_1$ ou $1/|\omega_L - \omega_0|$, il devient nécessaire de tenir compte du couplage atome-laser pendant la collision elle-même. On présente un calcul approché, au premier ordre en ω_1 , de l'effet d'une collision, et l'on analyse dans quelles conditions le résultat obtenu coïncide avec celui donné par la formule de Landau. On souligne également le lien étroit avec le résultat de la théorie quasistatique qui consiste à négliger le mouvement des atomes et à considérer les fréquences atomiques modifiées par la présence de perturbateurs fixes.

L'équation pilote

- Point essentiel du cours de l'an dernier : description de l'effet du couplage du système A, atome + mode laser, avec le réservoir R constitué par l'ensemble des autres modes vides



Ce couplage est responsable de l'amortissement de A. Problème général de la relaxation d'un petit système couplé à un grand réservoir.

- La méthode utilisée l'an dernier pour aborder ce problème est celle de l'équation pilote.

Soit $\sigma(t)$ l'opérateur densité du système global A + R, dépendant de t dans le point de vue de Schrödinger.

Si l'on s'intéresse aux seules observables de A, leurs valeurs moyennes s'expriment à partir de l'opérateur densité réduit

$$\sigma_A(t) = \text{Tr}_R \sigma(t)$$

obtenue en prenant la trace partielle de $\sigma(t)$ par rapport à R

On peut montrer que, moyennant certaines approximations, très bien justifiées pour le problème particulier étudié ici, $\sigma_A(t)$ obéit à une équation différentielle du 1^{er} ordre, appelée équation pilote (cf cours 1975-76).

Cette équation pilote permet d'étudier la relaxation de n'importe quelle observable G_A de A

$$\langle G_A \rangle(t) = \text{Tr} \sigma_A(t) G_A$$

$$\frac{d}{dt} \langle G_A \rangle(t) = \text{Tr} \left[G_A \frac{d}{dt} \sigma_A(t) \right]$$

On étudie ainsi l'évolution des valeurs moyennes à 1 temps.

Les fonctions de corrélations

- La plupart des observations expérimentales faites sur un système A sont reliées, directement ou indirectement, à des fonctions de corrélation d'observables de A.

Adoptons le point de vue de Heisenberg. L'opérateur densité σ du système est alors indépendant du temps. Par contre, les observables dépendent maintenant du temps. Soient $M_A(t)$ et $N_A(t')$ 2 observables de A. leur fonction de corrélation s'écrit :

$$\langle M_A(t) N_A(t') \rangle = \text{Tr} [\sigma M_A(t) N_A(t')]]$$

C'est la valeur moyenne du produit (et non le produit des valeurs moyennes!) des 2 observables de A correspondant à 2 instants différents.

- $M_A(t) - \langle M_A(t) \rangle$ représente la fluctuation de M_A par rapport à sa valeur moyenne à l'instant t . Le fait que $\langle M_A(t) N_A(t') \rangle$ soit en général différent de $\langle M_A(t) \rangle \langle N_A(t') \rangle$ indique que les fluctuations de M_A à l'instant t et celles de N_A à l'instant t' sont en général corrélées.
- Problème important : comment calculer les fonctions de corrélation ?

Equations de Heisenberg

- Au lieu d'essayer de calculer les fonctions de corrélation à partir de l'équation pilote, qui est bien adaptée au point de vue de Schrödinger et aux moyennes à un temps, (voir cependant cours 1975-76 pages XI-6 à XI-9), on peut partir des équations de Heisenberg décrivant l'évolution des divers observables.

$$\frac{d}{dt} M(t) = \frac{1}{i\hbar} [M(t), H]$$

où H est l'hamiltonien du système. Possibilité de multiplier les 2 membres de cette équation par $N(t')$, puis de prendre la valeur moyenne pour obtenir $\frac{d}{dt} \langle M(t) N(t') \rangle$.

- En réalité, le problème est très compliqué, car les observables de A sont couplés aux très nombreuses observables de R . Très grand nombre d'équations couplées. Peut-on néanmoins extraire de ces équations des résultats et de interprétations physiques simples ?

Réduction des équations de Heisenberg en équations de Langevin.

- Situation analogue en Physique classique : modèle de Langevin du mouvement Brownien.

Pour décrire le mouvement d'une particule lourde immergée dans un fluide, on remplace l'effet des chocs des molécules du fluide par une force de friction et une force aléatoire la force de Langevin. Moyennant certaines hypothèses simples sur les propriétés stochastiques de cette force de Langevin, on arrive à bien rendre compte du mouvement brownien de la particule.

- On peut alors se demander s'il n'est pas possible de réduire le très grand nombre d'équations de Heisenberg couplées en un plus petit nombre d'équations relatives aux seules observables de A , l'effet de R se réduisant à une force de friction + une force de Langevin.

- Problèmes .

Peut-on arriver à un tel résultat en partant des équations exactes du mouvement ?

Si oui, peut-on préciser les propriétés de la force de Langevin, les liens éventuels entre cette force et la force de friction ?

Peut-on calculer simplement les fonctions de corrélation, éventuellement moyennant certaines approximations justifiées ?

- Objet du cours de cette année

Essayer de répondre à ces diverses questions, dont l'intérêt dépasse le cadre des problèmes d'optique quantique considérés initialement, en partant de modèles phénoménologiques (modèle de Langevin) ou de résultats perturbatifs, (réponse linéaire) simple pour arriver à des théories plus élaborées (théorie de Mori).

En diducie une justification précise de certains résultats présentés comme plausibles l'an dernier mais non démontrés.

Éventuellement, pourvu la présentation et la discussion d'un certain nombre d'effets de saturation observables en spectroscopie laser.