17.01.84

Opérateur densité d'une particule quantique
Représentation de Wigner (suite et fin)

B – Atome à deux niveaux dans une onde lumineuse

[références 1 à 3]

Buts de ce § B

- Généraliser la discussion du § A précédent au cas d'une particule ayant des degrés de liberté internes : atome à 2 niveaux e et g couplé à une onde lumineuse.
- Etablir les équations d'évolution de la matrice densité en représentation de Wigner : généralisation des équations de Bloch optiques tenant compte à la fois des degrés de liberté internes et externes.
- Montrer que la conservation de l'impulsion globale lors des processus d'absorption, d'émission induite et d'émission spontanée apparait clairement dans les équations d'évolution.

(1) Nouvelles notations pour la matrice densité atomique.

- L'atome étant représenté par un système à 2 niveaux internes, e (état excité) et g (état fondamental), les éléments de la matrice densité atomique σ sont maintenant repérés par 2 variables continues (r' et r'', ... comme dans le § A précédent) pour les degrés de liberté externes, et par 2 indices discrets a et b (égaux à e ou g), pour les degrés de liberté internes. Nous noterons :

$$\left\{\begin{array}{l}\sigma_{ab}(r',r'') = \langle a,r'|\sigma|b,r''\rangle \\ \sigma_{ab}(p',p'') = \langle a,p'|\sigma|b,p''\rangle\end{array}\right. \qquad \left\{\begin{array}{l}F_{ab}(r,u) = \langle a,r+\frac{u}{2}|\sigma|b,r-\frac{u}{2}\rangle \\ G_{ab}(p,v) = \langle a,p+\frac{v}{2}|\sigma|b,p-\frac{v}{2}\rangle\end{array}\right. \quad (8.1)$$

$$w_{ab}(r,p) = \frac{1}{h^3}\int du\, F_{ab}(r,u)\, e^{-ipu/\hbar} = \frac{1}{h^3}\int dv\, G_{ab}(p,v)\, e^{irv/\hbar} \quad (8.2)$$

- Nous pouvons alors effectuer la trace sur les degrés de liberté internes, ce qui permet de définir les fonctions

$$F(r,u) = F_{ee}(r,u) + F_{gg}(r,u) \qquad G(p,v) = G_{ee}(p,v) + G_{gg}(p,v) \quad (8.3)$$

$$w(r,p) = w_{ee}(r,p) + w_{gg}(r,p) \quad (8.4)$$

$w(r,p)$ est une quasidensité de probabilité de la particule en r, p, quel que soit son état interne. Les quantités

$$\mathcal{R}(r) = F(r,0) = \int dp\; w(r,p) \quad (8.5)$$

$$\mathcal{P}(p) = G(p,0) = \int dr\; w(r,p) \quad (8.6)$$

sont les densités vraies de particules en r et p.

(2) Hamiltonien du système atome + rayonnement

- L'onde incidente, monochromatique, est supposée correspondre à un champ dans un état cohérent. On sait alors (référence 4) qu'on peut, à l'aide d'une transformation unitaire, mettre l'hamiltonien du système atome + rayonnement sous une forme équivalente, où le champ incident est traité classiquement, l'atome continuant toutefois à interagir avec le champ quantique du vide. Cet hamiltonien $H(t)$ s'écrit

$$H(t) = H_A + H_R + H_{AR} + V(t) \quad (8.7)$$

où

$$H_A = \frac{P^2}{2M} + \hbar\omega_0 S_3 \qquad \text{avec} \quad S_3 = \frac{1}{2}(|e\rangle\langle e| - |g\rangle\langle g|) \qquad (8.8)$$

est l'hamiltonien atomique (le 1er terme est l'énergie cinétique du centre de masse, le 2ème donne la structure interne : 2 niveaux e et g séparés par $\hbar\omega_0$, où ω_0 est la fréquence atomique).

$$H_R = \sum_i \hbar\omega_i (a_i^+ a_i + \tfrac{1}{2}) \qquad (8.9)$$

est l'hamiltonien du rayonnement quantique développé en modes i de fréquence ω_i (a_i^+ et a_i sont les opérateurs de création et de destruction d'un photon du mode i).

$$H_{AR} = \sum_i \left(v_i S_+ e^{ik_i R} a_i + v_i^* a_i^+ e^{-ik_i R} S_- \right) \qquad (8.10)$$

décrit l'interaction de l'atome avec les divers modes du champ quantique (interaction à l'origine de l'émission spontanée). Dans (8.10), v_i est un coefficient de couplage atome - mode i

$$S_+ = |e\rangle\langle g| \qquad\qquad S_- = |g\rangle\langle e| \qquad (8.11)$$

R est l'<u>opérateur</u> position du centre de masse

$$V(t) = -d\, S_+ \mathcal{E}^+(R) e^{-i\omega t} - d\, S_- \mathcal{E}^-(R) e^{i\omega t} \qquad (8.12)$$

décrit l'interaction de l'atome avec l'onde incidente, monochromatique (de fréquence ω), interaction à l'origine de l'absorption et de l'émission induite. $d = \langle e|D|g\rangle$ est l'élément de matrice de l'opérateur dipôle D entre e et g. $\mathcal{E}^+(r) e^{-i\omega t}$ est la partie de fréquence positive du champ <u>classique</u> associé à l'onde incidente. Il faut noter que c'est $\mathcal{E}^+(R)$, et non $\mathcal{E}^+(r)$, qui apparaît dans (8.12). Les degrés de liberté externes (de translation) de l'atome sont traités quantiquement dans (8.12) et dans tous les autres termes de (8.7)

③ <u>Evolution de l'opérateur densité atomique réduit</u>

- Soit σ_{AR} l'opérateur densité du système global atome + rayonnement. Si l'on s'intéresse à l'atome seul, l'état de ce dernier est décrit par l'opérateur densité réduit σ_A, ou plus simplement σ, obtenu en prenant la trace de σ_{AR} sur les variables de rayonnement

$$\sigma = \sigma_A = Tr_R\, \sigma_{AR} \qquad (8.13)$$

- Comme

$$i\hbar \frac{d}{dt} \sigma_{AR}(t) = [H(t), \sigma_{AR}(t)] \qquad (8.14)$$

où $H(t)$ est donné en (8.7), on en déduit que

$$\frac{d}{dt}\sigma(t) = \frac{1}{i\hbar} Tr_R \left([H(t), \sigma_{AR}(t)] \right) \qquad (8.15$$

Nous passons maintenant en revue les contributions, à la vitesse de variation (8.15) de σ, des divers termes de (8.7)

④ <u>Contribution de l'hamiltonien atomique</u>

- L'énergie cinétique ne dépendant pas des opérateurs de rayonnement, le calcul de la trace sur R de (8.15) est immédiat, et le résultat (7.48) du § A précédent demeure valable. On obtient

$$\dot{w}_{ab}(r,p) = -\frac{p}{M}\frac{\partial}{\partial r} w_{ab}(r,p) \qquad (8.16)$$

ce qui donne, par transformée de Fourier sur p

$$\dot{F}_{ab}(r,u) = \frac{i\hbar}{M}\frac{\partial^2}{\partial r\,\partial u} F_{ab}(r,u) \qquad (8.17)$$

– S_z n'agissant pas sur les variables externes et sur les variables de rayonnement, on obtient pour la contribution du terme $\hbar\omega_0 S_z$ de (8.8)

$$\begin{cases} \dot{\sigma}_{eg}(r',r'') = -i\omega_0\, \sigma_{eg}(r',r'') \\ \dot{\sigma}_{ge}(r',r'') = i\omega_0\, \sigma_{ge}(r',r'') \\ \dot{\sigma}_{ee}(r',r'') = 0 = \dot{\sigma}_{gg}(r',r'') \end{cases} \qquad (8.18)$$

et des équations analogues pour $\dot{\sigma}_{ab}(p',p'')$, $\dot{F}_{ab}(r,u)$, $\dot{W}_{ab}(r,p)$ ...

⑤ Contribution de l'interaction avec l'onde incidente. Absorption et émission induite.

– L'opérateur $V(t)$ écrit en (8.12) étant purement atomique, le calcul de sa contribution à (8.15) est très simple (la trace sur R est immédiate) et donne

$$\dot{\sigma} = \frac{id}{\hbar}\, e^{-i\omega t}\left[\mathcal{E}^+(R)\, S_+\, \sigma - \sigma\, S_+\, \mathcal{E}^+(R)\right] + h.c. \qquad (8.19)$$

– Comme R est l'opérateur position du centre de masse, on obtient, en prenant l'élément de matrice de (8.19) entre $\langle e, r'|$ et $|g, r''\rangle$

$$\dot{\sigma}_{eg}(r',r'') = \frac{id}{\hbar}\, e^{-i\omega t}\left[\mathcal{E}^+(r')\, \sigma_{gg}(r',r'') - \mathcal{E}^+(r'')\, \sigma_{ee}(r',r'')\right] \qquad (8.20)$$

Il convient de noter que le fait de traiter quantiquement R et P se traduit, dans (8.20), par l'apparition de $\mathcal{E}^+(r')$ ou $\mathcal{E}^+(r'')$ suivant que $\mathcal{E}^+(R)$ est à gauche ou à droite de σ dans (8.19). Si les degrés de liberté externes étaient traités classiquement, seule la valeur du champ incident au point r où se trouve l'atome interviendrait.

– On peut également utiliser la représentation de σ dans la base $\{|p\rangle\}$ et projeter (8.19) entre $\langle e, p'|$ et $|g, p''\rangle$. Si l'on décompose $\mathcal{E}^+(R)$ en intégrale de Fourier spatiale

$$\mathcal{E}^+(R) = \int dk\; \mathcal{E}^+(k)\, e^{ikR} \qquad (8.21)$$

et qu'on utilise le fait que e^{ikR} est un opérateur de translation en représentation d'impulsion

$$\begin{aligned} e^{ikR}|p''\rangle &= |p''+\hbar k\rangle \\ \langle p'|e^{ikR} &= \langle p'-\hbar k| \end{aligned} \qquad (8.22)$$

on obtient, à partir de (8.19)

$$\dot{\sigma}_{eg}(p',p'') = \frac{id}{\hbar}\int dk\; \mathcal{E}^+(k)\, e^{-i\omega t}\left[\sigma_{gg}(p'-\hbar k, p'') - \sigma_{ee}(p', p''+\hbar k)\right] \qquad (8.23)$$

En comparant les termes de droite et de gauche dans (8.23), on voit que le passage de e à g dans le "bra" (émission induite) fait passer de p' à $p'-\hbar k$ (l'atome perd l'impulsion emportée par le photon), tandis que le passage de g à e dans le ket (absorption) fait passer de p'' à $p''+\hbar k$ (l'atome acquiert l'impulsion du photon absorbé). La conservation de l'impulsion dans les processus élémentaires d'absorption et d'émission induite apparait donc très clairement dans les équations d'évolution (8.23)

– A partir de (8.20), on déduit l'équation d'évolution de $F_{eg}(r,u)$

$$\dot{F}_{eg}(r,u) = \frac{id}{\hbar}\, e^{-i\omega t}\left[\mathcal{E}^+(r+\tfrac{u}{2})\, F_{gg}(r,u) - \mathcal{E}^+(r-\tfrac{u}{2})\, F_{ee}(r,u)\right] \qquad (8.24)$$

puis, en prenant la transformée de Fourier de (8.24) par rapport à u, celle de $w_{eg}(r,p)$

$$\dot{w}_{eg}(r,p) = \frac{id}{\hbar}\int dk\; \mathcal{E}^+(k)\, e^{i(kr-\omega t)}\left[w_{gg}(r,p-\tfrac{\hbar k}{2}) - w_{ee}(r,p+\tfrac{\hbar k}{2})\right] \qquad (8.25)$$

On peut facilement interpréter l'apparition du facteur $\hbar k/2$ dans (8.25). En effet, dans (8.23), seule l'une des deux impulsions p' ou p'' était modifiée de $\mp\hbar k$; or, dans $w(r,p)$, c'est $p=(p'+p'')/2$ qui intervient

– les équations d'évolution des autres éléments de matrice (internes) de σ, sous l'effet de $V(t)$, s'obtiennent de la même manière à partir de (8.19), et seront données plus loin (§ 7).

⑥ Contribution de l'interaction avec les modes vides – Emission spontanée

– A la différence des autres termes de (8.7), H_{AR} agit à la fois sur les variables atomiques et de rayonnement, de sorte que le calcul de la trace sur R dans (8.15) n'est pas aussi simple que pour les autres termes

– En fait, le problème de l'évolution de la matrice densité atomique réduite sous l'effet du couplage avec les modes vides du rayonnement (problème de l'émission spontanée) peut être abordé dans le cadre général de la théorie de la relaxation à la limite du "rétrécissement par le mouvement". [5, 6]. Le champ électromagnétique, avec son très grand nombre de degrés de liberté, peut être considéré comme un grand "réservoir" fluctuant, dont le temps de corrélation τ_c (temps de corrélation des "fluctuations du vide") est suffisamment court pour que la condition de rétrécissement par le mouvement

$$\sqrt{\langle H_{AR}^2\rangle}\;\tau_c/\hbar \ll 1 \qquad (8.26)$$

soit très largement satisfaite.

Le calcul de la vitesse de variation de σ dûe à H_{AR} est exposé en détail dans la référence (5), dans le cas où la position R de l'atome est traitée classiquement, et supposée de plus fixe. Il nous faut donc reprendre ici ces calculs en tenant compte du fait que R est un opérateur.

– En reprenant la suite des calculs qui font passer de l'équation (4.18) à l'équation (4.27) de la référence (5), et en utilisant l'expression (8.10) de H_{AR}, on obtient [voir aussi l'appendice à la fin du chapitre qui donne les grandes lignes d'un tel calcul].

$$\left[\frac{d}{dt}\sigma(t)\right]_{\substack{em.\\ spont.}} = -\frac{1}{\hbar^2}\int_0^\infty d\tau \sum_i |v_i|^2 e^{-i\omega_i\tau}\Big\{ e^{ik_iR}\, S_+\, \tilde{S}_-(-\tau)\, e^{-ik_i\tilde{R}(-\tau)}\,\sigma(t)$$
$$- e^{-ik_i\tilde{R}(-\tau)}\,\tilde{S}_-(-\tau)\,\sigma(t)\, S_+\, e^{ik_iR}\Big\} + h.c. \qquad (8.27)$$

où l'indice ∼ désigne la représentation d'interaction par rapport à l'hamiltonien atomique non perturbé H_A.

Notons que, pour calculer la vitesse de variation de σ dûe à l'émission spontanée, nous prenons $V(t) = 0$ dans (8.7) (pas d'onde incidente). En effet, le temps de corrélation τ_c associé à l'émission spontanée est si court que l'effet du couplage entre l'atome et l'onde incidente est négligeable pendant τ_c.

– En utilisant la relation de commutation générale

$$[R, f(P)] = i\hbar \frac{\partial}{\partial P} f(P) \tag{8.28}$$

nous pouvons calculer l'opérateur $\tilde{R}(-\tau)$ apparaissant dans (8.27)

$$\tilde{R}(-\tau) = e^{-iH_A\tau/\hbar}\, R\, e^{iH_A\tau/\hbar} = e^{-iP^2\tau/2M\hbar}\, R\, e^{iP^2\tau/2M\hbar}$$

$$= R - \frac{P\tau}{M} \tag{8.29}$$

De même, on peut calculer aisément $\tilde{S}_\pm(-\tau)$

$$\tilde{S}_\pm(-\tau) = e^{-iH_A\tau/\hbar}\, S_\pm\, e^{iH_A\tau/\hbar} = e^{-i\omega_0 S_3\tau}\, S_\pm\, e^{i\omega_0 S_3\tau} = S_\pm e^{\mp i\omega_0\tau} \tag{8.30}$$

Lorsque les degrés de liberté externes sont traités classiquement, R et $\tilde{R}(\tau)$ sont tous deux égaux à un même vecteur classique r dans (8.27). Les exponentielles $e^{\pm ikr}$ se contractent alors dans chaque terme de (8.27) et disparaissent du $2^{\text{ème}}$ membre de cette équation qui ne concerne plus que les degrés de liberté internes. Si l'on pose

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_i |v_i|^2\, \delta(\hbar\omega_0 - \hbar\omega_i) \tag{8.31}$$

où Γ est la probabilité d'émission spontanée d'un photon par unité de temps (règle d'or de Fermi), on retrouve alors les équations bien connues

$$\dot{\sigma}_{ee} = -\Gamma\sigma_{ee} \qquad \dot{\sigma}_{gg} = \Gamma\sigma_{ee} \qquad \dot{\sigma}_{eg} = -\frac{\Gamma}{2}\sigma_{eg} \qquad \dot{\sigma}_{ge} = -\frac{\Gamma}{2}\sigma_{ge} \tag{8.32}$$

[Des termes imaginaires, représentant des déplacements de niveaux, apparaissent également dans les équations, ils sont réintégrés dans ω_0)

– Revenons maintenant à la théorie entièrement quantique où R et $\tilde{R}(-\tau)$ sont des opérateurs. Leur différence est, d'après (8.29), égale à $P\tau/M$. Dans l'intégrale sur τ de (8.27), les valeurs de τ sont en fait limitées à des valeurs très proches de zéro, de l'ordre du temps de corrélation τ_c des fluctuations du vide [$\sum_i |v_i|^2 e^{-i\omega_i\tau}$ est une fonction très étroite en τ, de largeur τ_c]. Dans (8.29), $P\tau/M$ est donc de l'ordre de $P\tau_c/M$, qui représente le déplacement de l'atome pendant τ_c. Aux vitesses usuelles, un tel déplacement est négligeable du fait de la petitesse de τ_c. Nous pouvons donc remplacer dans (8.27) $\tilde{R}(-\tau)$ par R, sans perdre de vue toutefois que <u>R reste un opérateur</u>.

Dans le premier terme de (8.27), R (opérateur externe) commute avec les opérateurs internes $\tilde{S}_\pm$ et $S_\pm$. Les 2 opérateurs $\exp[\pm ik_iR]$ se contractent alors pour donner 1 : les opérateurs externes disparaissent ainsi de ce terme. Il n'en est pas de même pour le second termes entre accolades, où les operateurs $\exp[\pm ik_iR]$ restent séparés par σ. Tous les effets nouveaux par rapport à (8.32), vont donc provenir de ce $2^{\text{ème}}$ terme qui, d'après les éléments de matrice de S_+ et S_- encadrant σ, intervient uniquement dans l'équation reliant $\dot{\sigma}_{gg}$ à σ_{ee} (transfert de e à g par emission spontanée]. Les équations d'évolution de σ_{ee}, σ_{eg}, σ_{ge} vont donc rester inchangées, quand on rajoute les nombres quantiques externes qui restent "spectateurs". On obtient ainsi

$$\dot{\sigma}_{ee}(r',r'') = -\Gamma\sigma_{ee}(r',r'') \qquad \dot{\sigma}_{eg}(r',r'') = -\frac{\Gamma}{2}\sigma_{eg}(r',r'') \qquad \dot{\sigma}_{ge}(r',r'') = -\frac{\Gamma}{2}\sigma_{ge}(r',r'') \tag{8.33}$$

et des équations analogues pour $\sigma_{ab}(p',p'')$, $F_{ab}(r,u)$, $w_{ab}(r,p)$ pour $(a,b) \neq (g,g)$

– Pour voir ce que devient l'équation donnant $\dot{\sigma}_{gg}$, prenons l'élément de matrice du $2^{ème}$ terme entre accolades de (8.27), plus celui de son complexe conjugué entre $\langle g,p'|$ et $|g,p''\rangle$. En utilisant comme plus haut (8.22), on obtient

$$\left[\dot{\sigma}_{gg}(p',p'')\right]_{\substack{em.\\spont.}} = \frac{2\pi}{\hbar}\sum_i |v_i|^2\,\delta(\hbar\omega_0-\hbar\omega_i)\,\sigma_{ee}(p'+\hbar k_i, p''+\hbar k_i) \tag{8.34}$$

Le coefficient de couplage $|v_i|^2$ entre l'atome et le mode $\vec{k}_i$ dépend du module k_i de $\vec{k}_i$, mais ne dépend de la direction $\vec{\kappa} = \vec{k}_i/k_i$ que par l'intermédiaire d'une fonction $\phi(\vec{\kappa})$ que l'on peut choisir normée

$$\int d^2\kappa\;\phi(\vec{\kappa}) = 1 \tag{8.35}$$

$\Gamma\,\phi(\vec{\kappa})\,d^2\kappa$ est la probabilité par unité de temps d'émission spontanée d'un photon dans l'angle solide $d^2\kappa$ autour de $\vec{\kappa}$. On obtient alors à partir de (8.34) [compte tenu de 8.31]

$$\left[\dot{\sigma}_{gg}(\vec{p}',\vec{p}'')\right]_{\substack{em.\\spont.}} = \Gamma\int d^2\kappa\;\phi(\vec{\kappa})\;\sigma_{ee}\left(\vec{p}'+\frac{\hbar\omega_0}{c}\vec{\kappa}, \vec{p}''+\frac{\hbar\omega_0}{c}\vec{\kappa}\right) \tag{8.36}$$

où nous avons remis les flèches sur les vecteurs pour plus de clarté. L'interprétation physique de (8.36) est très claire : lors de l'émission spontanée d'un photon de fréquence ω_0 (égale à la fréquence atomique par conservation de l'énergie), dans la direction $\vec{\kappa}$, l'atome passe de e à g et son impulsion est diminuée de l'impulsion $\hbar\omega_0\vec{\kappa}/c$ du photon émis. La probabilité d'un tel processus par unité de temps étant $\Gamma\,\phi(\vec{\kappa})$, il faut ensuite sommer sur $\vec{\kappa}$ pour avoir la vitesse totale de transfert en g

Notons, qu'à la différence de (8.23), la conservation de l'impulsion, explicite dans (8.36), se manifeste à la fois sur p' et p'', car la vitesse de variation de σ due à l'émission spontanée [cf 8.27] fait intervenir 2 opérateurs d'interaction [calcul du $2^{ème}$ ordre].

– A partir de (8.36), on obtient aisément l'équation d'évolution de $G_{gg}(p,v) = \sigma_{gg}(p+\frac{v}{2}, p-\frac{v}{2})$, puis par transformée de Fourier par rapport à v, celle de $w_{gg}(r,p)$

$$\left[\dot{w}_{gg}(\vec{r},\vec{p})\right]_{\substack{em.\\spont}} = \Gamma\int d^2\kappa\;\phi(\vec{\kappa})\;w_{ee}\left(\vec{r}, \vec{p}+\frac{\hbar\omega_0}{c}\vec{\kappa}\right) \tag{8.37}$$

dont l'interprétation physique est aussi simple que celle de (8.36). On notera en particulier la disparition du facteur 1/2 apparaissant dans (8.25), car $\vec{p}'$ et $\vec{p}''$ sont tous deux translatés de $\hbar\omega_0\vec{\kappa}/c$.

– Enfin, par transformation de Fourier par rapport à p de (8.37), on obtient

$$\left[\dot{F}_{gg}(\vec{r},\vec{u})\right]_{\substack{em.\\spont.}} = \Gamma\,\chi(\vec{u})\,F_{ee}(\vec{r},\vec{u}) \tag{8.38}$$

où

$$\chi(\vec{u}) = \int d^2\vec{\kappa}\;\phi(\vec{\kappa})\;e^{-i\frac{\omega_0}{c}\vec{\kappa}\cdot\vec{u}} \tag{8.39}$$

⑦ Récapitulation : équations de Bloch optiques généralisées

– Posons $\quad \tilde{w}_{eg}(r,p) = w_{eg}(r,p)\, e^{i\omega t} \qquad \tilde{w}_{ge}(r,p) = w_{ge}(r,p)\, e^{-i\omega t}$ (8.40)

[équivalent du passage dans le référentiel tournant], et des formules analogues pour $\tilde{F}_{eg}(r,u)$ et $\tilde{F}_{ge}(r,u)$. Pour simplifier les notations, nous omettons désormais l'indice $\sim$. Si l'on introduit, comme plus haut, le désaccord $\delta = \omega - \omega_0$ entre les fréquences du laser (ω) et de l'atome (ω_0), on obtient, en récapitulant tous les résultats précédents, les E.B.O. généralisées

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{P}{M}\frac{\partial}{\partial r}\right) w_{ee}(r,p) = \frac{id}{\hbar}\int dk \left[\mathcal{E}^{+}(k)\, e^{ikr}\, w_{ge}\!\left(r,p-\frac{\hbar k}{2}\right) - \mathcal{E}^{-}(k)\, e^{-ikr}\, w_{eg}\!\left(r,p-\frac{\hbar k}{2}\right)\right] - \Gamma\, w_{ee}(r,p) \quad ⓐ$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{P}{M}\frac{\partial}{\partial r}\right) w_{gg}(r,p) = \frac{id}{\hbar}\int dk \left[\mathcal{E}^{-}(k)\, e^{-ikr}\, w_{eg}\!\left(r,p+\frac{\hbar k}{2}\right) - \mathcal{E}^{+}(k)\, e^{ikr}\, w_{ge}\!\left(r,p+\frac{\hbar k}{2}\right)\right] + \Gamma \int d^2\vec{\kappa}\; \phi(\vec{\kappa})\, w_{ee}\!\left(\vec{r},\vec{p}+\frac{\hbar\omega_0}{c}\vec{\kappa}\right) \quad ⓑ$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{P}{M}\frac{\partial}{\partial r}\right) w_{eg}(r,p) = \frac{id}{\hbar}\int dk\; \mathcal{E}^{+}(k)\, e^{ikr}\left[w_{gg}\!\left(r,p-\frac{\hbar k}{2}\right) - w_{ee}\!\left(r,p+\frac{\hbar k}{2}\right)\right] + \left(i\delta - \frac{\Gamma}{2}\right) w_{eg}(r,p) \quad ⓒ$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} + \frac{P}{M}\frac{\partial}{\partial r}\right) w_{ge}(r,p) = \frac{id}{\hbar}\int dk\; \mathcal{E}^{-}(k)\, e^{-ikr}\left[w_{ee}\!\left(r,p+\frac{\hbar k}{2}\right) - w_{gg}\!\left(r,p-\frac{\hbar k}{2}\right)\right] - \left(i\delta + \frac{\Gamma}{2}\right) w_{ge}(r,p) \quad ⓓ$$

(8.41)

décrivant l'évolution couplée des degrés de liberté internes et externes.

– La représentation $\{r,u\}$ peut être aussi utile

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} - i\frac{\hbar}{M}\frac{\partial^2}{\partial r\,\partial u}\right) F_{ee}(r,u) = \frac{id}{\hbar}\left[\mathcal{E}^{+}\!\left(r+\frac{u}{2}\right) F_{ge}(r,u) - \mathcal{E}^{-}\!\left(r-\frac{u}{2}\right) F_{eg}(r,u)\right] - \Gamma\, F_{ee}(r,u) \quad ⓐ$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} - i\frac{\hbar}{M}\frac{\partial^2}{\partial r\,\partial u}\right) F_{gg}(r,u) = \frac{id}{\hbar}\left[\mathcal{E}^{-}\!\left(r+\frac{u}{2}\right) F_{eg}(r,u) - \mathcal{E}^{+}\!\left(r-\frac{u}{2}\right) F_{ge}(r,u)\right] + \Gamma\, \chi(u)\, F_{ee}(r,u) \quad ⓑ$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} - i\frac{\hbar}{M}\frac{\partial^2}{\partial r\,\partial u}\right) F_{eg}(r,u) = \frac{id}{\hbar}\left[\mathcal{E}^{+}\!\left(r+\frac{u}{2}\right) F_{gg}(r,u) - \mathcal{E}^{+}\!\left(r-\frac{u}{2}\right) F_{ee}(r,u)\right] + \left(i\delta - \frac{\Gamma}{2}\right) F_{eg}(r,u) \quad ⓒ$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial t} - i\frac{\hbar}{M}\frac{\partial^2}{\partial r\,\partial u}\right) F_{ge}(r,u) = \frac{id}{\hbar}\left[\mathcal{E}^{-}\!\left(r+\frac{u}{2}\right) F_{ee}(r,u) - \mathcal{E}^{-}\!\left(r-\frac{u}{2}\right) F_{gg}(r,u)\right] - \left(i\delta + \frac{\Gamma}{2}\right) F_{ge}(r,u) \quad ⓓ$$

(8.42)

⑧ Discussion physique

a) Eléments nouveaux par rapport aux E.B.O. ordinaires pour un atome immobile en $\vec{r}$

– Termes de "vol libre" (en $\frac{P}{M}\frac{\partial}{\partial r}$ ou $\frac{i\hbar}{M}\frac{\partial^2}{\partial r\,\partial u}$) au 1er membre de (8.41) ou (8.42)

– Termes liés à la conservation de l'impulsion dans l'interaction avec les photons

Termes en $\pm\frac{\hbar k}{2}$, en $\frac{\hbar\omega_0}{c}\vec{\kappa}$ dans w_{ab} au 2ème membre de (8.41)

Termes $\pm\frac{u}{2}$ dans $\mathcal{E}^{\pm}\left(r\pm\frac{u}{2}\right)$, terme $\chi(\vec{u})$ au 2ème membre de (8.42)

b) Comment se manifestent les effets physiques liés au vol libre ?

– Plaçons nous dans le référentiel propre de l'atome. Mathématiquement, cela revient à se placer en représentation d'interaction par rapport au terme d'énergie cinétique

$$\sigma_{AR}(t) \longrightarrow \tilde{\sigma}_{AR}(t) = e^{iP^2(t-t_0)/2M\hbar}\; \sigma_{AR}(t)\; e^{-iP^2(t-t_0)/2M\hbar} \qquad (8.43)$$

$\tilde{\sigma}_{AR}(t)$ obéit à une équation analogue à (8.15) avec un hamiltonien $\tilde{H}$ ne contenant plus de terme d'énergie cinétique, et où tous les autres termes de (8.7) sont pris en représentation d'interaction par rapport à $P^2/2M$, ce qui revient à remplacer dans (8.10) et (8.12) R par (voir 8.29)

$$\tilde{R}(t) = e^{iP^2(t-t_0)/2M\hbar}\; R\; e^{-iP^2(t-t_0)/2M\hbar} = R + P(t-t_0)/M \qquad (8.44)$$

– En ce qui concerne l'émission spontanée, les temps $t-t_0$ caractéristiques apparaissant dans (8.44) sont de l'ordre du temps de corrélation des fluctuations du vide, qui est si court que $P(t-t_0)/M$ est négligeable, comme nous l'avons déjà mentionné plus haut (voir page VIII-5). Le vol libre n'affecte donc pas l'émission spontanée

- En ce qui concerne l'interaction avec l'onde laser, on a

$$\tilde{V}(t) = -D^+E^+\left(R + \frac{P(t-t_0)}{M}\right) - D^-E^-\left(R + \frac{P(t-t_0)}{M}\right) \qquad (8.45)$$

$t-t_0$ peut alors être de l'ordre de Γ^{-1} (temps d'évolution des variables internes) et $P(t-t_0)/M$ n'est plus forcément négligeable. Physiquement, le vol libre modifie l'interaction atome-laser par suite de l'<u>effet Doppler</u>. Cet effet sera petit si $P(t-t_0)/M \simeq P/M\Gamma$ est petit devant $\lambda = 1/k$ qui caractérise les variations spatiales de $E^\pm$, c-à-d si

$$kP/M = kv \ll \Gamma \quad \longleftrightarrow \quad \text{Effet Doppler} \ll \text{Largeur naturelle} \qquad (8.46)$$

<u>Conclusion</u> : il est possible d'éliminer les termes de vol libre dans les E.B.O. généralisées au moyen d'un changement de représentation, mais les termes d'interaction avec le laser sont alors modifiés, les corrections correspondantes étant petites si $kv \ll \Gamma$.

c) <u>Dans quelles limites les E.B.O. généralisées redonnent-elles les E.B.O. ordinaires?</u>

- Pour pouvoir éliminer les termes de vol libre et négliger les corrections correspondantes dans $\tilde{V}(t)$, il faut tout d'abord que $kv \ll \Gamma$ (voir § b ci-dessus)
- Pour pouvoir remplacer au 2$^{\text{ème}}$ membre de (8.41) $w_{ab}(r, p \pm \frac{\hbar k}{2})$ et $w_{ee}(r, p + \frac{\hbar\omega_0}{c}\vec{k})$ par $w_{ab}(r,p)$ et $w_{ee}(r,p)$, il faut d'autre part que

$$\hbar k \ll \bar{p} \qquad (8.47)$$

où $\bar{p}$ est largeur en p de $w_{ab}(r,p)$

- Il y a donc 2 infiniment petits, kv/Γ et $\hbar k/\bar{p}$, caractérisant la déviation des E.B.O. généralisées par rapport aux E.B.O. ordinaires pour un atome immobile en r.

Mais nous avons vu dans le cours IV (voir Fig. 4 page IV-9) que pour un atome soumis au refroidissement radiatif, on a (à l'équilibre) $\bar{p}^2/2M \simeq \hbar\Gamma$, de sorte que $\bar{p} \sim \sqrt{\hbar\Gamma M}$. On en déduit que

$$\frac{kv}{\Gamma} \simeq \frac{k\bar{p}/M}{\Gamma} \simeq \sqrt{\frac{E_{recul}}{\hbar\Gamma}} \qquad \frac{\hbar k}{\bar{p}} \simeq \sqrt{\frac{E_{recul}}{\hbar\Gamma}} \qquad (8.48)$$

Les 2 infiniment petits sont donc tous deux de l'ordre de $\sqrt{\frac{E_{recul}}{\hbar\Gamma}}$

<u>Conclusion</u> On peut envisager de développer les E.B.O. généralisées en puissances de $\sqrt{E_{rec}/\hbar\Gamma}$, par exemple en développant (8.45) en puissances de $kP(t-t_0)/M$, en développant $w_{ab}(r, p \pm \frac{\hbar k}{2})$ en puissances de $\hbar k/p$ (ce qui fera notamment apparaître des dérivées partielles de w_{ab} par rapport à p)... A l'ordre 0, on retrouve les E.B.O. ordinaires où degrés de liberté internes et externes sont découplés. Les termes d'ordre 1, 2... permettront d'étudier de manière de plus en plus précise les manifestations du couplage entre les 2 types de degrés de liberté

<u>Problème</u> Peut-on à partir de ce développement perturbatif, déduire des E.B.O. généralisées l'équation d'évolution de $w(r,p,t) = w_{ee}(r,p,t) + w_{gg}(r,p,t)$, c-à-d l'<u>équation cinétique quantique</u> décrivant le mouvement de l'atome dans l'onde lumineuse, et comparer cette équation aux équations cinétiques <u>classiques</u> des cours V et VI ? Ce problème sera abordé dans le cours IX

Appendice : Justification de l'expression (8.27)

– Formulation du problème : un "petit" système $\mathcal{A}$, d'hamiltonien H_A, est couplé par l'hamiltonien d'interaction H_{AR} à un "grand réservoir" $\mathcal{R}$ d'hamiltonien H_R. L'hamiltonien total s'écrit

$$H = H_A + H_R + H_{AR} \qquad (A-1)$$

avec

$$H_{AR} = \lambda \sum_i A_i R_i \qquad (A-2)$$

où λ est une constante de couplage, A_i (R_i) une observable de $\mathcal{A}$ ($\mathcal{R}$)

L'opérateur densité σ_{AR} du système global évolue suivant

$$\frac{d}{dt}\sigma_{AR} = \frac{1}{i\hbar}[H, \sigma_{AR}] \qquad (A-3)$$

Problème : trouver $\frac{d}{dt}\sigma_A(t)$ où $\sigma_A(t) = \mathrm{Tr}_R\, \sigma_{AR}(t)$ (A-4)

– Représentation d'interaction

$$\begin{cases} \tilde{\sigma}_{AR}(t) = e^{i(H_A+H_R)\frac{t}{\hbar}}\, \sigma_{AR}(t)\, e^{-i(H_A+H_R)\frac{t}{\hbar}} & (A-5) \\ \tilde{H}_{AR}(t) = e^{i(H_A+H_R)t/\hbar}\, H_{AR}\, e^{-i(H_A+H_R)t/\hbar} = \lambda \sum_i \tilde{A}_i(t)\, \tilde{R}_i(t) & (A-6) \end{cases}$$

(A.3) devient

$$\frac{d}{dt}\tilde{\sigma}_{AR}(t) = \frac{1}{i\hbar}\left[\tilde{H}_{AR}(t), \tilde{\sigma}_{AR}(t)\right] \qquad (A-7)$$

– Hypothèses concernant l'opérateur densité initial.

(i) $\sigma_{AR}(0)$ est factorisé $\qquad \sigma_{AR}(0) = \sigma_A(0)\,\sigma_R(0)$ (A-8)

(ii) $\sigma_R(0)$ commute avec H_R [le réservoir est dans un état stationnaire]

$$[\sigma_R(0), H_R] = 0 \qquad (A-9)$$

Ceci est bien vrai pour l'émission spontanée, puisque l'état initial du rayonnement (qui est ici le réservoir) est le vide $|0\rangle$, état propre de H_R

– Solution itérative de l'équation d'évolution de $\sigma_{AR}(t)$: (A-7)

$$\tilde{\sigma}_{AR}(t) = \tilde{\sigma}_{AR}(0) + \int_0^t dt' \frac{1}{i\hbar}\left[\tilde{H}_{AR}(t'), \tilde{\sigma}_{AR}(t')\right] \qquad (A-10)$$

En reportant (A.10) dans (A.7), on obtient, compte tenu de (A.8)

$$\frac{d}{dt}\tilde{\sigma}_{AR}(t) = \frac{1}{i\hbar}\left[\tilde{H}_{AR}(t), \sigma_A(0)\,\sigma_R(0)\right] - \frac{1}{\hbar^2}\int_0^t dt' \left[\tilde{H}_{AR}(t), \left[\tilde{H}_{AR}(t'), \tilde{\sigma}_{AR}(t')\right]\right] \qquad (A.11)$$

et par suite

$$\frac{d}{dt}\tilde{\sigma}_A(t) = \frac{d}{dt}\mathrm{Tr}_R\,\tilde{\sigma}_{AR}(t) = \frac{1}{i\hbar}\left[\mathrm{Tr}_R\left(\tilde{H}_{AR}(t)\,\sigma_R(0)\right), \sigma_A(0)\right] + $$
$$- \frac{1}{\hbar^2}\int_0^t dt'\, \mathrm{Tr}_R\left\{\left[\tilde{H}_{AR}(t), \left[\tilde{H}_{AR}(t'), \tilde{\sigma}_{AR}(t')\right]\right]\right\} \qquad (A.12)$$

Dans le cas de l'émission spontanée, $\mathrm{Tr}_R\left(\tilde{H}_{AR}(t), \sigma_R(0)\right) = 0$ car a_i et a_i^+ ont une valeur moyenne nulle dans le vide [comparer (8.10) et (A.2)] et le 1er terme du 2ème membre de (A.12) est nul.

– Approximation 1 . Dans le 2ème terme du 2ème membre de (A.12), on pose

$$\tilde{\sigma}_{AR}(t') \simeq \left(\mathrm{Tr}_R\,\tilde{\sigma}_{AR}(t')\right)\left(\mathrm{Tr}_A\,\tilde{\sigma}_{AR}(t')\right) \simeq \tilde{\sigma}_A(t')\,\tilde{\sigma}_R(0) \qquad (A.13)$$

Ce faisant, on néglige les corrélations entre $\mathcal{A}$ et $\mathcal{R}$ contenues dans $\tilde{\sigma}_{AR}(t')$ et on néglige la variation de l'état du grand réservoir $\mathcal{R}$ entre 0 et t' sous l'effet du couplage avec le petit système $\mathcal{A}$. [La vitesse de variation (A.12) est en effet déjà d'ordre 2 en H_{AR}]. En reportant (A.13) dans (A.12), on obtient, compte tenu de (A-6) et en posant $t - t' = \tau$

$$\frac{d}{dt}\tilde{\sigma}_A(t) = -\frac{\lambda^2}{\hbar^2}\sum_{ij}\int_0^t d\tau\; G_{ij}(\tau) \times$$
$$\left\{\tilde{A}_j(t)\tilde{A}_i(t-\tau)\tilde{\sigma}_A(t-\tau) - \tilde{A}_i(t-\tau)\tilde{\sigma}_A(t-\tau)\tilde{A}_j(t)\right\} + h.c. \qquad (A.14)$$

avec $$G_{ij}(\tau) = Tr_R\left(\sigma_R(0)\,\tilde{R}_j(t)\,\tilde{R}_i(t-\tau)\right) = \langle 0|\tilde{R}_j(t)\,\tilde{R}_i(t-\tau)|0\rangle \qquad (A.15)$$

(on a utilisé $\sigma_R(0) = |0\rangle\langle 0|$ pour l'émission spontanée). Le réservoir R n'apparait plus dans l'équation d'évolution de $\tilde{\sigma}_A(t)$ que par l'intermédiaire des fonctions de corrélation $G_{ij}(\tau)$, qui sont des fonctions très étroites en τ si le spectre de fréquence de Bohr de R apparaissant dans $\tilde{R}_j(t)$ est très large

- Approximation 2 (Markov)

La présence de $G_{ij}(\tau)$ dans (A.14) limite les valeurs de τ dans l'intégrale à des valeurs de l'ordre de τ_c où τ_c est le temps de corrélation des fluctuations du réservoir. Si τ_c est très court devant le temps d'évolution de $\tilde{\sigma}_A(t)$ (temps de relaxation T_R), on peut remplacer dans (A.15) $\tilde{\sigma}_A(t-\tau)$ par $\tilde{\sigma}_A(t)$. Pour l'émission spontanée $\tau_c < \omega_0^{-1}$ et $T_R \sim \Gamma^{-1}$ et la condition $\tau_c \ll T_R$ est très largement vérifiée car $\omega_0 \gg \Gamma$. En repassant dans le point de vue de Schrödinger, l'équation d'évolution (A.15) devient

$$\frac{d}{dt}\sigma_A(t) = \frac{1}{i\hbar}\left[H_A, \sigma_A(t)\right] - \frac{\lambda^2}{\hbar^2}\int_0^\infty d\tau \sum_{ij} G_{ij}(\tau) \times$$
$$\left\{A_j\,\tilde{A}_i(-\tau)\,\sigma_A(t) - \tilde{A}_i(-\tau)\,\sigma_A(t)\,A_j\right\} + h.c. \qquad (A.16)$$

En comparant (8.10) et (A.2), on voit que R_i est proportionnel à a_i ou a_i^+. Pour que la fonction de corrélation $G_{ij}(\tau)$ définie en (A.15) soit non nulle, on voit alors qu'il faut prendre $R_i = a_i^+$ et $R_j = a_i$ (partant du vide, on ne peut à l'ordre 2 que créer un photon et détruire ce même photon). On a alors forcément, d'après (8.10), $A_i = e^{-ik_i\cdot R}\,S_-$ et $A_j = e^{ik_i\cdot R}\,S_+$
En reportant alors ces valeurs de A_i, A_j, R_i, R_j dans (A-16) et (A-15), on obtient alors l'équation (8.27) qui est ainsi justifiée

- Conditions de validité des approximations 1 et 2

$$\sqrt{\langle H_{AR}^2\rangle}\,\tau_c/\hbar \ll 1 \qquad (A.17)$$

Références

(1) C. TANGUY Thèse 3e cycle (Paris 1982)
La présentation choisie dans ce cours suit de très près celle du § III-C de cette référence

(2) V. LETOKHOV, V. MINOGIN Phys. Reports 73, 1 (1981)

(3) R. J. COOK Phys. Rev. A 22, 1078 (1980)

(4) B.R. MOLLOW Phys. Rev. A12, 1919 (1975)

(5) C. COHEN-TANNOUDJI in Frontiers in Laser Spectroscopy, Balian et al editors, Les Houches Session XXVII, 1975 North Holland 1977

(6) G.S. AGARWAL Quantum statistical theories of spontaneous emission and their relation to other approaches. Springer tracts in modern physics 1973, vol. 66