

Configuration Λ

Interférences entre amplitudes de diffusion

X-1

Buts de ce cours (voir Ref. 1)

- Présenter un autre point de vue pour interpréter physiquement le phénomène de piégeage cohérent de populations observable sur une configuration Λ . Ce point de vue consiste à étudier la diffusion d'un photon ω_{L1} par un atome interagissant avec des photons ω_{L2} .
- Identifier les amplitudes qui interfèrent et interpréter les phénomènes résonnants observables au voisinage
 - (i) de la condition de résonance Raman entre niveaux non perturbés.
 - (ii) de la condition de résonance Raman entre niveaux déplacés par la lumière.
- Montrer l'analogie entre les variations avec ω_{L1} de la section efficace de diffusion et les profils de Fano.

① Hypothèses - Buts du calcul

- Même configuration de niveaux que dans les cours précédents

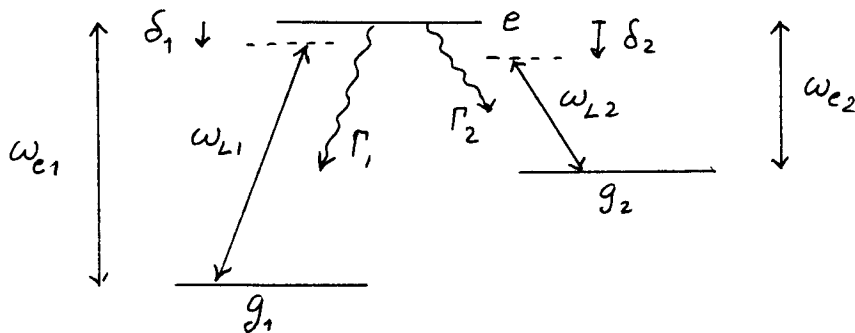


Fig. 1

- Etats initial et final du processus de diffusion étudié

Etat initial $|i\rangle$

Atome dans g_1 - 1 photon ω_{L1} - N_2 photons ω_{L2}
Tous les autres modes du champ vides.

Etat final $|f\rangle$

Atome dans g_1 - 0 photon ω_{L1} - N_2 photons ω_{L2}
1 photon de fluorescence ω

Le but du calcul est de comprendre comment la présence de photons ω_{L2} peut inhiber la diffusion du photon incident ω_{L1} (disparition du photon ω_{L1} et remplacement de ce photon par un photon de fluorescence ω)

Remarques

- (i) Nous considérerons également plus loin des processus où des photons ω_{L2} disparaissent au cours du processus de diffusion et où plusieurs photons de fluorescence apparaissent (cf § 3 e)
- (ii) Quand le champ de rayonnement est quantifié dans un cube de côté L , les fréquences de Rabi Ω_1 et Ω_2 , caractérisant le couplage de l'atome avec les photons ω_{L1} et ω_{L2} (et définies à partir des éléments de matrice de l'hamiltonien d'interaction V),

sont respectivement proportionnelles à

$$\Omega_1 \sim \sqrt{\frac{\hbar \omega_{L1}}{2\epsilon_0 L^3}} \quad \Omega_2 \sim \sqrt{\frac{N_2 \hbar \omega_{L2}}{2\epsilon_0 L^3}} \quad (10.1)$$

Si l'on fait tendre L vers l'infini, il faut aussi faire tendre N_2 vers l'infini, de manière à garder N_2/L^3 et par suite Ω_2 constants. Par contre, Ω_1^2 , qui varie en $1/L^3$, tend vers 0, de même donc que la probabilité de diffusion par unité de temps w du photon ω_{L1} . Il ne faut pas oublier cependant que le flux incident associé au photon incident, $\phi = c/L^3$, varie aussi en $1/L^3$, de sorte que la section efficace de diffusion du photon incident, proportionnelle à w/ϕ , est indépendante de L .

En d'autres termes, nous calculons ici la section efficace de diffusion d'un photon ω_{L1} par un atome interagissant avec un nombre N_2 de photons ω_{L2} tel que la fréquence de Rabi Ω_2 a une valeur bien définie.

- Rappels sur l'amplitude de diffusion S_{fi} (voir Ref 2, compléments A_I et B_{III})
 S_{fi} : Élément de la matrice S entre $|i\rangle$ et $\langle f|$.

$$S_{fi} = \delta_{fi} - 2\pi i \delta(E_f - E_i) T_{fi} \quad (10.2)$$

T_{fi} : Matrice de transition définie par

$$T_{fi} = V_{fi} + \langle f | V \frac{1}{E_i - H + i\eta} V | i \rangle \quad (10.3)$$

Dans (10.3),

$V_{fi} = \langle f | V | i \rangle$ est l'élément de matrice de l'hamiltonien d'interaction V entre atome et photons.

$H = H_0 + V$ est l'hamiltonien total, H_0 étant l'hamiltonien non perturbé du système atome + photons n'interagissant pas.

Les états initial et final, $|i\rangle$ et $|f\rangle$, sont des états propres de H_0 , de valeurs propres E_i et E_f .

η est un réel que l'on fait tendre vers 0 par valeurs positives.

Remarques

(i) Comme $H = H_0 + V$ figure au dénominateur du dernier terme de (10.3), l'expression exacte (10.3) est non perturbative vis à vis de V .

(ii) Si l'on développe le propagateur $\frac{1}{E_i - H + i\epsilon}$ en puissance de V et du propagateur non perturbé $\frac{1}{E_i - H_0 + i\epsilon}$, on obtient le développement de Born de l'amplitude de diffusion. L'expression exacte (10.3) résume donc le développement de Born.

(iii) L'approximation du "champ tournant" est faite dans V . On néglige donc les processus où l'atome dans g_1 émet et reabsorbe virtuellement un photon. Les états $|i\rangle$ et $|f\rangle$ (atome dans g_1 en présence d'un photon ω_{L1} ou ω) sont donc des états asymptotiques corrects pour le processus de diffusion (voir Complément B_{III} de la Ref. 2)

② Calcul de l'amplitude de diffusion.

a - Lien entre la matrice S et la résolvente de H

- L'approximation dipolaire électrique et l'approximation du champ tournant conduisent pour V à l'expression

$$V = - \vec{d}^+ \cdot \vec{E}^+ - \vec{d}^- \cdot \vec{E}^- \quad (10.4)$$

où $\vec{d}^+$ et $\vec{d}^-$ sont les parties montante et descendante de l'opérateur dipole $\vec{d}$, et où $\vec{E}^+$ et $\vec{E}^-$ sont les composantes de fréquence positive et négative de l'opérateur champ électrique.

- Pour passer de $|i\rangle$ à $|f\rangle$, il faut détruire le photon incident ω_L et créer le photon de fluorescence ω . Comme $\vec{E}^+$ et $\vec{E}^-$ ne peuvent que détruire ou créer un seul photon à la fois, V ne peut relier $|i\rangle$ à $|f\rangle$

$$V_{fi} = 0 \quad (10.5)$$

- Posons $|i\rangle = |g_1; 1, N_2, 0\rangle \quad (10.6)$

où 1, représente 1 photon dans le mode ω_L , N_2 représente N_2 photons dans le mode ω_L et 0 le vide pour tous les autres modes, et calculons $V|i\rangle$.

A cause de l'approximation du champ tournant, l'atome dans g_1 ne peut qu'absorber le photon ω_L et monter dans e (il ne peut pas émettre de photon nouveau et monter dans e). Par ailleurs, nous supposons les fréquences des 2 transitions g_1-e et g_2-e suffisamment différentes pour qu'on puisse négliger les couplages non résonnants entre les photons ω_L et l'atome dans g_1 (l'absorption non résonnante d'un photon ω_L par l'atome dans g_1 peut être négligée). Le seul état auquel $|i\rangle$ est couplé par V est donc l'état $|e; 0, N_2, 0\rangle$, et on peut écrire

$$V|i\rangle = \frac{\hbar\Omega_1}{2} |e; 0, N_2, 0\rangle \quad (10.7)$$

où Ω_1 peut être considérée comme la fréquence de Rabi associée au couplage avec le photon ω_L .

- Posons $|f\rangle = |g_1; 0, N_2, 1\omega\rangle \quad (10.8)$

où 1ω représente l'état avec 1 photon ω , tous les modes autres que ω_L , ω_L et ω étant vides, et calculons $V|f\rangle$. Le même raisonnement que celui fait précédemment montre que le seul processus possible à partir de $|f\rangle$ est l'absorption des photons ω par l'atome montant de g_1 à e, de sorte que

$$\langle f|V = \frac{\hbar\Omega}{2} \langle e; 0, N_2, 0| \quad (10.9)$$

où Ω peut être considérée comme la fréquence de Rabi associée au couplage avec le photon ω .

- Reportons (10.5), (10.7) et (10.9) dans l'expression (10.3) de T_{fi} . Si l'on introduit la résolvante (X-4)

$$G(z) = \frac{1}{z - H} \quad (10.10)$$

de H , z étant la variable complexe, on peut écrire

$$T_{fi} = \frac{\hbar^2 \Omega_1 \Omega_2}{4} \lim_{\eta \rightarrow 0_+} \langle e; 0_1, N_2, 0 | G(z = E_i + i\eta) | e; 0_1, N_2, 0 \rangle \quad (10.11)$$

Pour simplifier les notations, nous posons

$$|\varphi_e\rangle = |e; 0_1, N_2, 0\rangle \quad (10.12)$$

$$G_{ee}(z) = \langle \varphi_e | G(z) | \varphi_e \rangle \quad (10.13)$$

de sorte que

$$T_{fi} = \frac{\hbar^2 \Omega_1 \Omega_2}{4} \lim_{\eta \rightarrow 0_+} G_{ee}(z = E_i + i\eta) \quad (10.14)$$

b - Calcul des éléments de matrice importants de la résolvante

- L'état $|\varphi_e\rangle$ est un état discret de H_0 , couplé à un continuum d'états finals auxquels il peut être couplé de manière résonnante (atome dans l'état g_1 ou g_2 avec un photon de fluorescence émis ayant une énergie proche de $\hbar\omega_{e1}$ ou $\hbar\omega_{e2}$). L'état $|\varphi_e\rangle$ est donc un état instable et on peut songer à utiliser des techniques d'opérateurs de projection pour calculer la restriction de $G(z)$ dans l'état $|\varphi_e\rangle$.

- Auparavant, il faut se demander s'il n'existe pas d'autre état discret de H_0 , proche de $|\varphi_e\rangle$, et qui serait couplé à $|\varphi_e\rangle$, soit directement, soit indirectement via le continuum auquel est couplé $|\varphi_e\rangle$. Dans un tel cas, on sait en effet qu'il ne serait pas correct d'étudier l'évolution de $|\varphi_e\rangle$ indépendamment de ces autres états discrets proches de lui.

- Or, il existe bien un tel état. C'est l'état

$$|\varphi_2\rangle = |g_2; 0_1, N_2+1, 0\rangle \quad (10.15)$$

contenant un photon ω_{22} de plus que φ_e , l'atome étant dans g_2 au lieu d'être dans e . Si ω_{22} est voisin de ω_{e2} , les énergies de $|\varphi_e\rangle$ et $|\varphi_2\rangle$ sont très proches l'une de l'autre. De manière plus précise, si l'on prend pour 0 d'énergie l'énergie de l'état $|\varphi_e\rangle$

$$E_{\varphi_e} = 0 \quad (10.16)$$

on a

$$E_{\varphi_2} = \hbar \delta_2 \quad (10.17)$$

où $\delta_2 = \omega_{22} - \omega_{e2}$ (voir Figure 1). Par ailleurs, les états $|\varphi_e\rangle$ et $|\varphi_2\rangle$ sont bien couplés l'un à l'autre par V puisque l'atome dans l'état g_2 peut absorber un photon ω_{22} et monter dans e . Plus précisément

$$\langle \varphi_2 | V | \varphi_e \rangle = \frac{\hbar \Omega_2}{2} \quad (10.18)$$

(Comme $N_2 \gg 1$ à la limite $L \rightarrow \infty$, $\sqrt{N_2+1} \approx \sqrt{N_2}$).

Notons par contre que $|\varphi_2\rangle$ n'est pas couplé directement à un continuum puisqu'on suppose g_2 stable radiativement (pas d'émission spontanée de g_2 vers g_1).

[X-5]

- En toute rigueur, l'état $|i\rangle$ est un autre état propre de H_0 , couplé à $|\varphi_e\rangle$ (voir équation 10.7), et d'énergie très voisine puisque, avec le zéro d'énergie (10.16), on a

$$E_i = \hbar \delta_1 \quad (10.19)$$

où $\delta_1 = \omega_{L1} - \omega_{e1}$. Le couplage $\hbar \Omega_1/2$ entre $|i\rangle$ et $|\varphi_e\rangle$ tend cependant vers 0 quand $L \rightarrow \infty$ et nous négligerons son effet sur l'évolution des états $|\varphi_e\rangle$ et $|\varphi_2\rangle$.

- La discussion précédente montre qu'il ne faut pas étudier seulement $G_{ee}(z)$, mais plutôt la restriction de $G(z)$

$$\begin{pmatrix} G_{ee}(z) & G_{e2}(z) \\ G_{2e}(z) & G_{22}(z) \end{pmatrix} \quad (10.20)$$

dans le sous-espace sous-tendu par $|\varphi_e\rangle$ et $|\varphi_2\rangle$. Des techniques d'opérateurs de projection (voir Ref. 2, chapitre III) permettent alors de montrer que la matrice (10.20) est l'inverse de la matrice

$$\begin{pmatrix} z - E_{\varphi_e} - V_{ee} - R_{ee}(z) & -V_{e2} - R_{e2}(z) \\ -V_{2e} - R_{2e}(z) & z - E_{\varphi_2} - V_{22} - R_{22}(z) \end{pmatrix} \quad (10.21)$$

Dans (10.21), $R(z)$ est l'opérateur déplacement que nous n'expliquerons ici. Nous nous contenterons d'indiquer (voir Ref. 2, chap. III pour plus de détails) que les éléments de matrice de $R(z)$ varient très peu avec z au voisinage de $E_i + i\eta$ et que leurs valeurs sont reliées au voisinage de $z = E_i + i\eta$ aux largeurs naturelles des états instables. Comme ici seul l'état $|\varphi_e\rangle$ est instable, on a

$$R_{ee}(z \text{ voisin de } E_i + i\eta) \approx -i\hbar \frac{\Gamma}{2} \quad R_{e2} = R_{22} = 0 \quad (10.22)$$

En utilisant (10.16), (10.17), (10.18), (10.22) et le fait que $V_{ee} = V_{22} = 0$, on obtient alors

$$z \text{ voisin de } E_i + i\eta \quad \begin{pmatrix} G_{ee}(z) & G_{e2}(z) \\ G_{2e}(z) & G_{22}(z) \end{pmatrix}^{-1} = \begin{pmatrix} z + i\hbar \frac{\Gamma}{2} & -\hbar \frac{\Omega_2}{2} \\ -\hbar \frac{\Omega_2}{2} & z - \hbar \delta_2 \end{pmatrix} \quad (10.23)$$

De (10.23), on déduit alors immédiatement par inversion de la dernière matrice de (10.23)

$$z \text{ voisin de } E_i + i\eta \quad G_{ee}(z) = \frac{z - \hbar \delta_2}{(z - z_I)(z - z_{II})} \quad (10.24)$$

où $(z - z_I)(z - z_{II})$ est le déterminant associé à la matrice (10.23), z_I et z_{II} étant les 2 valeurs propres de cette matrice

On peut enfin décomposer en (10.24) en fractions rationnelles et obtenir

$$G_{ee}(z) = \frac{1}{z_I - z_{II}} \left[\frac{z_I - \hbar \delta_2}{z - z_I} - \frac{z_{II} - \hbar \delta_2}{z - z_{II}} \right] \quad (10.25)$$

C. Récapitulation - Conclusion

- Reportons (10.25) dans (10.14) et utilisons (10.19). Comme 3_I et 3_{II} sont complexes, le $i\gamma$ n'est plus nécessaire et on obtient

$$T_{fi} = \frac{\hbar^2 \Omega_1 \Omega_2}{4} \frac{1}{3_I - 3_{II}} \left[\frac{3_I - \hbar \delta_2}{\hbar \delta_1 - 3_I} - \frac{3_{II} - \hbar \delta_2}{\hbar \delta_1 - 3_{II}} \right] \quad (10.26)$$

- Il apparaît ainsi clairement que l'amplitude de diffusion, étudiée en fonction de δ_1 , pour δ_2 fixe, est une somme de 2 amplitudes variant de manière résonnante autour des valeurs réelles de 3_I et 3_{II} sur des intervalles de largeurs données par les parties imaginaires de 3_I et 3_{II} . Il y a donc bien un phénomène d'interférence quantique.

- Il apparaît aussi clairement sur (10.26) que les 2 termes du crochet de (10.26) se compensent exactement si $\delta_1 = \delta_2$.

$$\delta_1 = \delta_2 \rightarrow T_{fi} = 0 \quad (10.27)$$

L'interférence quantique est donc parfaitement destructive quand les fréquences ω_{L1} et ω_{L2} satisfont la condition de résonance Raman entre niveaux non déplacés par la lumière.

(3) - Limite perturbative - Discussion physique

Les calculs du § 2 précédent sont valables quel que soit Ω_2 . Nous supposons maintenant que l'effet du couplage avec les photons ω_{L2} peut être traité perturbativement, Ω_2 étant très petit, soit devant Γ , soit devant $|\delta_2|$. De manière plus précise, nous supposons

$$\delta_2 = \frac{\Omega_2^2/2}{\delta_2^2 + \frac{\Gamma^2}{4}} \ll 1 \quad (10.28)$$

où δ_2 est le paramètre de saturation pour la transition $g_2 - e$.

L'intérêt d'une telle limite est double. D'une part, elle conduit à des résonances étroites sur l'amplitude de diffusion, superposées à des résonances larges, ce qui fait apparaître des profils de Fano. D'autre part, elle se prête bien à des discussions physiques et à des représentations diagrammatiques simples.

a - Interprétation des 2 poles z_I et z_{II} de la résolvante

- D'après (10.23), la restriction de la résolvante dans le sous-espace sous-tendu par $|\varphi_2\rangle$ et $|\varphi_e\rangle$ peut être considérée comme la résolvante de l'hamiltonien effectif H_{eff}

$$H_{eff} = \hbar \begin{pmatrix} -i\frac{\Gamma}{2} & \frac{\Omega_2}{2} \\ \frac{\Omega_2}{2} & \delta_2 \end{pmatrix} \quad (10.29)$$

- 3_I et 3_{II} sont les 2 valeurs propres complexes de H_{eff} . Nous appelons 3_{II} la valeur propre qui tend vers δ_2 quand $\Omega_2 \rightarrow 0$. On peut toujours écrire

$$3_{II} = \hbar \left[\delta_2 + \delta'_2 - i\frac{\Gamma'_2}{2} \right] \quad (10.30)$$

où $\hbar\delta'_2$ et $-i\hbar\Gamma'_2/2$ sont les parties réelle et imaginaire de la correction introduite par Ω_2 . La conservation de la trace de (10.29)

donne alors pour z_I

$$z_I = -i \frac{\hbar \Gamma}{2} - \hbar \delta'_2 + i \frac{\hbar \Gamma'_2}{2} = -\hbar \delta'_2 - i \hbar \frac{\Gamma - \Gamma'_2}{2} \quad (10.31)$$

- La condition (10.28) permet de calculer δ'_2 et Γ'_2 perturbativement

$$\hbar(\delta'_2 - i \frac{\Gamma'_2}{2}) \simeq \frac{(\hbar \Omega_2/2)^2}{\hbar(\delta_2 + i \frac{\Gamma}{2})} \quad (10.32)$$

ce qui donne

$$\delta'_2 \simeq \delta_2 \frac{\delta_2}{2} \quad (10.33.a)$$

$$\Gamma'_2 \simeq \Gamma \frac{\delta_2}{2} \quad (10.33.b)$$

$\hbar \delta'_2$ et $\hbar \Gamma'_2$ ne sont autres que le déplacement radiatif et l'élargissement radiatif du niveau g_2 dûs aux photons ω_{L2}

z_{II} et z_I sont donc les énergies complexes des états g_2 et e perturbés par les photons ω_{L2} , les parties réelle et imaginaire étant associées respectivement à l'énergie perturbée et à la largeur des niveaux.

- Le couplage avec les photons ω_{L2} perturbe également les fonctions d'onde des états φ_2 et φ_e qui deviennent, au 1^{er} ordre en Ω_2 ,

$$|\varphi_2\rangle \rightarrow |\overline{\varphi_2}\rangle = |\varphi_2\rangle + \frac{\Omega_2/2}{\delta_2 + i \frac{\Gamma}{2}} |\varphi_e\rangle \quad (10.34.a)$$

$$|\varphi_e\rangle \rightarrow |\overline{\varphi_e}\rangle = |\varphi_e\rangle - \frac{\Omega_2/2}{\delta_2 + i \frac{\Gamma}{2}} |\varphi_2\rangle \quad (10.34.b)$$

Notons que, H_{eff} n'étant pas hermitique, $|\overline{\varphi_2}\rangle$ et $|\overline{\varphi_e}\rangle$ ne sont pas orthogonaux.

b - Interprétation des 2 résonances dans l'amplitude de diffusion

- En utilisant (10.19), (10.12) et le fait que la restriction de $G(z)$ dans le sous-espace $\{|\varphi_e\rangle, |\varphi_2\rangle\}$ est la résolvante de H_{eff} donné en (10.29), on peut recréer l'amplitude de transition (10.14) sous la forme

$$T_{fi} = \frac{\hbar^2 \Omega_1 \Omega_2}{4} \langle \varphi_e | \frac{1}{\hbar \delta_1 - H_{eff}} | \varphi_e \rangle \quad (10.35)$$

- Nous avons plus haut que H_{eff} a 2 valeurs propres $|\overline{\varphi_2}\rangle$ et $|\overline{\varphi_e}\rangle$, de valeurs propres z_{II} et z_I . En développant $|\varphi_e\rangle$ sur les 2 états propres de H_{eff}

$$|\varphi_e\rangle = \alpha |\overline{\varphi_e}\rangle + \beta |\overline{\varphi_2}\rangle \quad (10.36)$$

et en reportant (10.36) dans (10.35), on obtient

$$T_{fi} = \frac{\hbar^2 \Omega_1 \Omega_2}{4} \left\{ \alpha \langle \varphi_e | \overline{\varphi_e} \rangle \frac{1}{\hbar \delta_1 - z_I} + \beta \langle \varphi_e | \overline{\varphi_2} \rangle \frac{1}{\hbar \delta_1 - z_{II}} \right\} \quad (10.37)$$

Les 2 résonances qui apparaissent dans T_{fi} correspondent donc à 2 états intermédiaires possibles par lesquels le système global peut passer, après l'absorption du photon ω_{L1} et avant l'émission du photon de fluorescence ω : ces 2 états sont les états propres $|\overline{\varphi_e}\rangle$ et $|\overline{\varphi_2}\rangle$ de H_{eff} .

Remarque : Faire attention au fait que $\alpha \neq \langle \overline{\varphi_e} | \varphi_e \rangle$ dans (10.36), à cause de la non orthogonalité de $|\overline{\varphi_e}\rangle$ et $|\overline{\varphi_2}\rangle$. Même si les états $|\overline{\varphi_e}\rangle$ et $|\overline{\varphi_2}\rangle$ sont normés, on obtient, en prenant le produit

scalaire des 2 membres de (10.36) avec $\langle \bar{\varphi}_e |$

$$\langle \bar{\varphi}_e | \varphi_e \rangle = \alpha + \beta \langle \bar{\varphi}_e | \bar{\varphi}_2 \rangle \neq \alpha \quad (10.38)$$

Entre les composantes α et β du développement de $|\varphi_e\rangle$ sur la base $\{|\bar{\varphi}_e\rangle, |\bar{\varphi}_2\rangle\}$ et les produit scalaires $\langle \bar{\varphi}_e | \varphi_e \rangle$ et $\langle \bar{\varphi}_2 | \varphi_e \rangle$, il y a la même différence qu'entre les composantes contravariantes et covariantes d'un vecteur dans une base non orthogonale. Une autre manière d'exprimer le même point est que les vecteurs de base non orthogonaux $|\bar{\varphi}_e\rangle$ et $|\bar{\varphi}_2\rangle$ ne satisfont pas la relation de fermeture d'une base orthogonale

$$|\bar{\varphi}_e\rangle\langle\bar{\varphi}_e| + |\bar{\varphi}_2\rangle\langle\bar{\varphi}_2| \neq \mathbb{1} \quad (10.39)$$

- Interprétation des positions des 2 résonances

Ces positions correspondent aux valeurs de δ_1 pour lesquelles les parties réelles des dénominateurs de (10.37) s'annulent

- La 1^{ère} résonance, associée à $\mathcal{Z}_I$, apparaît pour

$$\delta_1 = -\delta'_2 \quad (10.40)$$

et correspond à la condition de résonance optique entre ω_{L1} et la fréquence de la transition $g_1 - e$ corrigée du déplacement lumineux $-\delta'_2$ du niveau e

$$\delta_1 = -\delta'_2 \iff \hbar\omega_{L1} = E_e - \hbar\delta'_2 - E_{g_1} = \hbar\omega_{e1} - \hbar\delta'_2$$

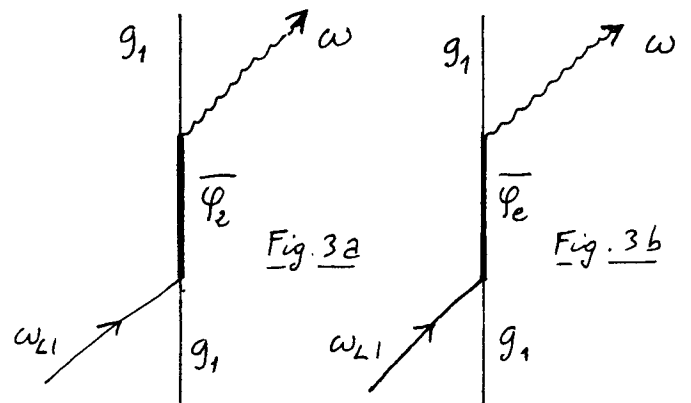
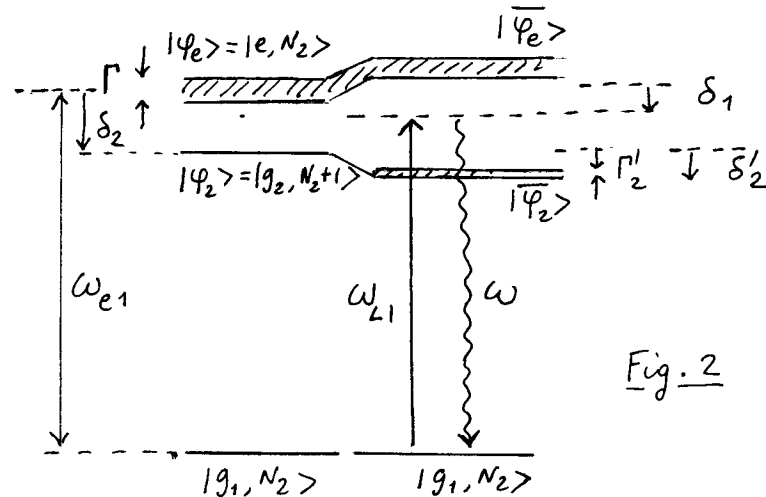
- La 2^{ème} résonance, associée à $\mathcal{Z}_{II}$, apparaît pour

$$\delta_1 = \delta_2 + \delta'_2 \quad (10.41)$$

et correspond à la condition de résonance Raman entre le niveau g_1 et le niveau g_2 déplacé par interaction avec les photons ω_{L2}

$$\delta_1 = \delta_2 + \delta'_2 \iff \hbar\omega_{L1} - \hbar\omega_{L2} = E_{g_2} + \hbar\delta'_2 - E_{g_1} \quad (10.42)$$

- Représentations diagrammatiques : 2 représentations possibles Fig. 2 et Fig. 3



- La partie gauche de la figure 2 représente les états non perturbés du système atome + photons ω_{L2} , la partie droite les états perturbés $|\bar{\varphi}_2\rangle$ et $|\bar{\varphi}_e\rangle$. (le couplage avec les photons ω_{L2} est non résonnant pour g_1 et n'affecte pas $|g_1, N_2\rangle$) l'atome, partant de g_1 , absorbe le photon ω_{L1} (flèche droite montante), passe intermédiairement dans $|\bar{\varphi}_e\rangle$ ou $|\bar{\varphi}_2\rangle$ et retombe dans g_1 en émettant le photon de fluorescence ω (flèche ondulée descendante)

- Les 2 figures 3.a et 3.b montrent plus clairement que la figure 2 les 2 états intermédiaires possibles du processus de diffusion, mais les défauts d'énergie dans l'état intermédiaire n'apparaissent pas, alors qu'ils apparaissent très clairement sur la figure 2.

C. Interprétation en termes de fluorescence et d'effet Raman stimulé et spontané

- Revenons à (10.26) et utilisons (10.30) et (10.31). Dans le dénominateur du terme qui multiplie le crochet, figure 3_I-3_{II} Dans les parties réelle et imaginaire de 3_I-3_{II}, on peut négliger δ'_2 devant δ_2 et Γ'_2 devant Γ , compte tenu de (10.33) et (10.28), et écrire $3_I - 3_{II} \approx -\hbar(\delta_2 + i\frac{\Gamma}{2})$. Les mêmes arguments permettent de remplacer dans le 1^{er} terme du crochet, $3_I - \hbar\delta_2$ par $-\hbar(\delta_2 + i\frac{\Gamma}{2})$ et $\hbar\delta_1 - 3_I$ par $\hbar(\delta_1 + i\frac{\Gamma}{2})$. Par contre le numérateur du 2^{em} terme du crochet, $3_{II} - \hbar\delta_2 = \hbar(\delta'_2 - i\frac{\Gamma'_2}{2})$ ne peut être négligé, bien qu'il soit d'ordre 2 en Ω_2 , puisque le dénominateur $\hbar\delta_1 - 3_{II} = \hbar(\delta_1 - \delta_2 - \delta'_2 + i\frac{\Gamma'_2}{2})$ peut lui aussi être très petit et d'ordre 2 en Ω_2 si $\delta_1 - \delta_2$ est très proche de 0. Les diverses approximations effectuées sur 3_I-3_{II} et sur le 1^{er} terme du crochet de (10.26) permettent d'obtenir pour T_{fi} l'expression approchée

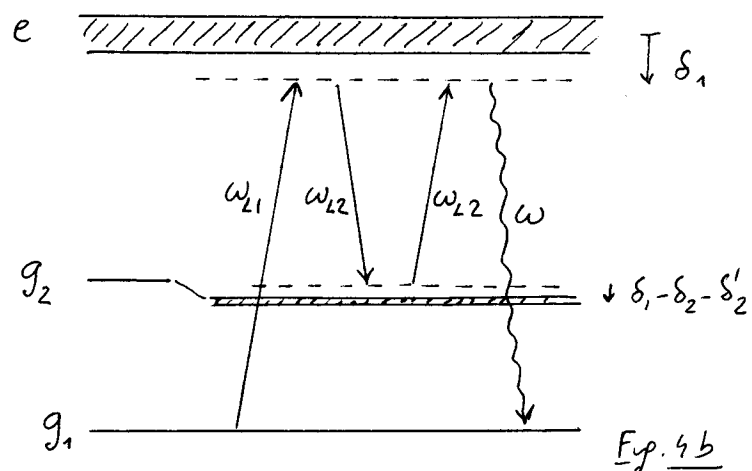
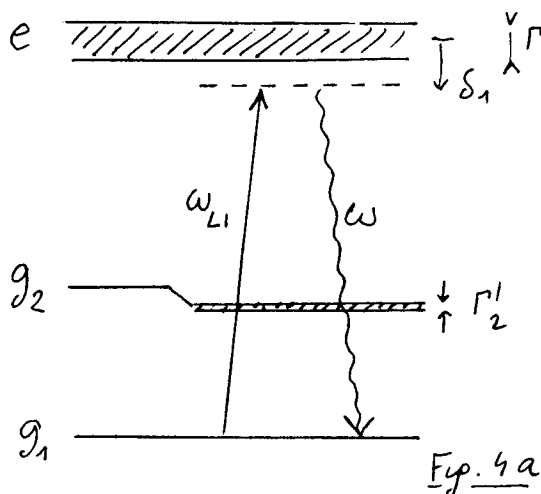
$$T_{fi} \approx \frac{\hbar \Omega_1 \Omega}{4} \left\{ \frac{1}{\delta_1 + i\frac{\Gamma}{2}} + \frac{\delta'_2 - i\frac{\Gamma'_2}{2}}{\delta_2 + i\frac{\Gamma}{2}} \frac{1}{\delta_1 - \delta_2 - \delta'_2 + i\frac{\Gamma'_2}{2}} \right\} \quad (10.43)$$

qui a l'avantage de continuer à s'annuler pour $\delta_1 = \delta_2$ comme l'expression exacte (10.26)

- Comme le dernier terme de (10.43) n'est important qu'au voisinage de $\delta_1 = \delta_2$ sur un intervalle de largeur $\Gamma'_2 \ll \Gamma$, on peut remplacer dans le dénominateur de ce dernier terme $\delta_2 + i\frac{\Gamma}{2}$ par $\delta_1 + i\frac{\Gamma}{2}$, de même que dans le dénominateur de l'expression (10.32) donnant $\delta'_2 - i\frac{\Gamma'_2}{2}$, que l'on utilise ensuite pour réexprimer le numérateur du dernier terme de (10.43). On obtient ainsi

$$T_{fi} \approx \frac{\hbar \Omega}{2} \left\{ \frac{1}{\hbar(\delta_1 + i\frac{\Gamma}{2})} + \frac{1}{\hbar(\delta_1 + i\frac{\Gamma}{2})} \frac{\hbar \Omega_2}{2} \frac{1}{\hbar(\delta_1 - \delta_2 - \delta'_2 + i\frac{\Gamma'_2}{2})} \frac{\hbar \Omega_2}{2} \frac{1}{\hbar(\delta_1 + i\frac{\Gamma}{2})} \right\} \frac{\hbar \Omega_1}{2} \quad (10.44)$$

- On peut alors donner une représentation diagrammatique très simple des 2 termes de (10.44). Voir Figures 4.a et 4.b



- Dans les 2 figures 4, les niveaux traces sont les niveaux atomique g_1, g_2, e , le niveau g_2 étant déplacé et élargi par l'interaction avec les photons ω_{L2} .

Le 1^{er} terme de (10.44) est associé à l'absorption de ω_{L1} suivie de l'émission de ω (fluorescence de résonance - voir Fig 4.a)

Le 2^e terme de (10.44) correspond à 1 processus à 4 photons, où l'atome, partant de g_1 , absorbe un photon ω_{L1} et passe dans e , puis émet de manière stimulée un photon ω_{L2} et passe dans g_2 , puis absorbe un photon ω_{L2} et remonte dans e avant finalement d'émettre spontanément le photon ω et de retomber dans g_1 . Chaque terme $\frac{\hbar\Omega_1}{2}, \frac{\hbar\Omega_2}{2}, \frac{\hbar\Omega_1}{2}$ du 2^e terme de (10.44) correspond à l'interaction avec un photon ω, ω_{L2} ou ω_{L1} , 2 interactions successives étant séparées par un dénominateur d'énergie relatif au défaut d'énergie de l'état intermédiaire. Un tel processus à 4 photons, représenté sur la figure 4b, décrit donc un processus Raman stimulé $g_1 \rightarrow g_2$ suivi par un processus Raman spontané $g_2 \rightarrow g_1$. L'amplitude correspondante devient importante quand l'énergie du 2^e état intermédiaire coïncide avec celle de l'état g_2 déplacé par les photons ω_{L2} , à Γ'_2 près.

d - Lien avec les profils de Fano

- Comme $\Gamma \gg \Gamma'_2$, on peut considérer l'état e des figures 4a et 4b comme un "continuum" vis à vis des autres états.

On voit alors sur la figure 4 que 2 chemins permettent d'atteindre ce continuum à partir de g_1 ,

(i) un chemin direct par absorption de ω_{L1} (Fig. 4a)

(ii) un chemin indirect passant par un état discret g_2

(Fig. 4b). L'état discret g_2 est atteint après un processus Raman stimulé $g_1 \rightarrow g_2$, puis l'absorption d'un photon ω_{L2} à partir de g_2 fait passer le système dans e .

- La situation précédente est du type de celles conduisant à des profils de Fano. (Voir par exemple Ref. 2, Complément C_I) Effectivement, on peut interpréter de cette manière les profils asymétriques apparaissant sur les variations avec δ_1 de la population de l'état excité (voir par exemple la figure 5b du cours IV). Le zéro de ces courbes correspond à la valeur de δ_1 pour laquelle l'interférence entre les 2 amplitudes de (10.26) est parfaitement destructive, c.-à.-d., comme nous l'avons vu plus haut $\delta_1 = \delta_2$ (condition de résonance Raman entre niveaux non perturbés). Le second terme de (10.43) est maximum quand $\delta_1 - \delta_2 - \delta'_2 = 0$ (condition de résonance Raman entre niveaux perturbés). Il est alors plus grand que le "fond" correspondant au 1^{er} terme par un facteur de l'ordre de $\frac{\delta'_2 - i\Gamma'_2/2}{i\Gamma'_2/2}$. Ce facteur a un module beaucoup plus grand que 1 si $|\delta'_2| \gg \Gamma'_2$, c'est à dire d'après (10.33), si $|\delta_2| \gg \Gamma$. Dans un tel cas, le pic étroit apparaissant sur la courbe 5b du cours IV peut être interprété comme résultant d'une résonance Raman entre niveaux perturbés.

- Notons enfin que, dans le cours IX, nous avons vu que si le système part de g_1 , l'amplitude $C_{e_1}(t)$ de le trouver, un instant t après dans l'état e avant toute émission spontanée, est une somme de 2 amplitudes $C_{e_1}(t)$ et $C_{e_2}(t)$ qui interfèrent destructivement si $\delta_1 = \delta_2$. Ces 2 amplitudes ne sont autres que celles décrivant les 2 chemins conduisant de g_1 à e et que nous venons de discuter.

e - Processus mettant en jeu plusieurs photons de fluorescence.

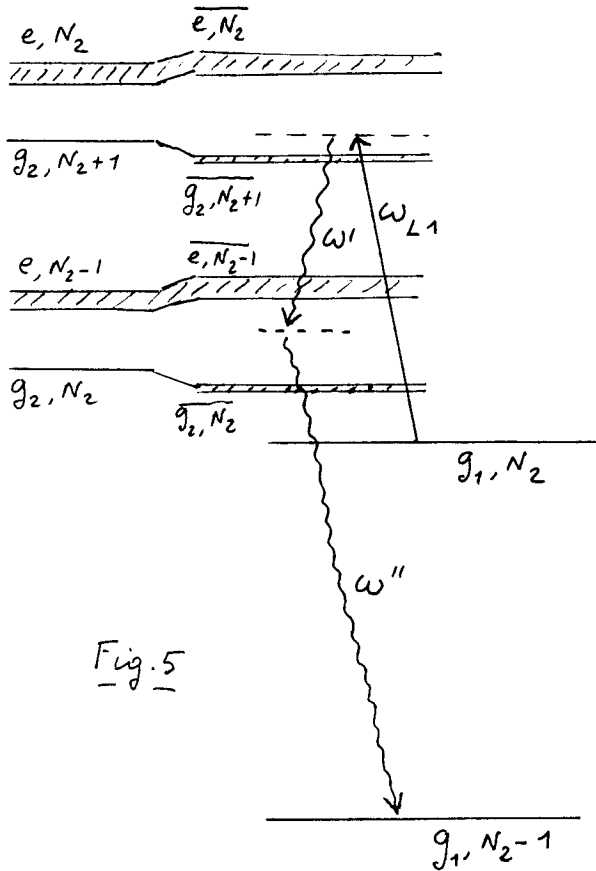


Fig. 5

- Ces processus apparaissent clairement sur des diagrammes d'énergie du type de ceux de la figure 2 et faisant intervenir plusieurs multiplicités de niveaux habillés par les photons ω_{L2} .

- Par exemple, la figure 5 montre un processus où l'atome, partant de g_1 , en présence d'un photon ω_{L1} et de N_2 photons ω_{L2} absorbe le photon ω_{L1} et passe dans l'un des 2 états habillés $\overline{e, N_2}$ ou $\overline{g_2, N_2+1}$ de la multiplicité $\{e, N_2, g_2, N_2+1\}$ (nous avons changé de notation par rapport à Φ_e, Φ_{g_2} pour faire apparaître N_2), puis tombe dans l'un des 2 états $\overline{e, N_2-1}$ ou $\overline{g_2, N_2}$ de la multiplicité $\{e, N_2-1, g_2, N_2\}$ en émettant spontanément un photon ω' avant d'arriver finalement dans l'état g_1, N_2-1 par émission spontanée d'un 2^{ème} photon ω'' . A cours d'un tel processus, 1 photon ω_{L1} et un photon ω_{L2} ont disparu et 2 photons ω' et ω'' , avec bien sûr $\omega' + \omega'' = \omega_{L1} + \omega_{L2}$, sont apparus.

- On peut montrer que les 2 chemins conduisant intermédiairement le système de g_1, N_2 à $\overline{g_2, N_2}$ via $\overline{e, N_2}$ ou $\overline{g_2, N_2+1}$ interfèrent destructivement quand $\delta_1 = \delta_2$, de même que les 2 chemins conduisant intermédiairement le système de g_1, N_2 à $\overline{e, N_2-1}$ via $\overline{e, N_2}$ ou $\overline{g_2, N_2+1}$. Une telle démonstration se généralise à tous les processus impliquant un nombre quelconque de photons de fluorescence.

- Notons enfin que, seuls, les états g_1 qui sont stables et n'ont pas de largeur peuvent être considérés comme les états finaux d'un processus de diffusion.

Références

- (1) Les résultats présentés dans ce cours proviennent d'un travail non encore publié, fait en collaboration avec B. Lounis.
- (2) C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc et G. Grynberg, Processus d'interaction entre photons et atomes - Référence déjà donnée page II-10.