HAL
open science

ATOMES ET LUMIERE INTERACTION MATIERE RAYONNEMENT version 2011

Claude Fabre

To cite this version:

Claude Fabre. ATOMES ET LUMIERE INTERACTION MATIERE RAYONNEMENT version 2011. Master / M2. 2011. sfo-00355926v3

HAL Id: sfo-00355926

https://hal-sfo.ccsd.cnrs.fr/sfo-00355926v3

Submitted on 4 Nov 2011

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

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

Master 2ème année : Concepts fondamentaux de la Physique

Parcours : Physique Quantique

Année 2011-2012

ATOMES ET LUMIÈRE

INTERACTION MATIÈRE RAYONNEMENT

Claude FABRE

Laboratoire Kastler Brossel
Université Pierre et Marie Curie, case 74
75252 Paris cedex 05, France

claude.fabre@upmc.fr

TABLE DES MATIÈRES

1 : LES APPROCHES PHÉNOMÉNOLOGIQUES 10
1. Le modèle de Lorentz 10
1.1 Atome de Lorentz isolé 11
1.2 Effet de l'environnement : relaxation 13
2. Le modèle d'Einstein 14
2.1 Equation d'évolution des populations 15
2.2 Énergie transférée de l'atome au champ appliqué 16
3. Récapitulatif 17

2 : APPROCHE SEMI-CLASSIQUE 18
1. Atome isolé 18
1.1 Hamiltonien d'interaction (rappels) 18
1.2 Approximation du système à 2 niveaux ; vecteur de Bloch 20
1.3 qubits et quregistres 22
1.4 Hamiltonien dipolaire électrique pour le système à deux niveaux 23
1.5 Hamiltonien séculaire 24
1.6 Evolution du système 25
2. Effet de l'environnement : équations de Bloch 26
2.1 Matrice densité 26
2.2 Evolution de la matrice densité sous l'effet du seul champ 29
2.3 Evolution en présence de relaxation 29
2.4 Équations de Bloch (cas d'une transition entre niveau fondamental et niveau excité) 31
2.5 Cas d'un système peu excité 31
2.6 Evolution du système à partir de l'état fondamental dans le cas général 32
2.7 Régime de fort amortissement du dipôle 32
2.8 Généralisation des équations de Bloch 34

3. Propagation de la lumière dans un ensemble dilué d'atomes à deux niveaux : équations de Maxwell-Bloch 35
4. Interaction avec un champ non monochromatique 36
4.1 Sources lumineuses stationnaires à spectre large 36
4.2 Evolution de l'atome en présence du champ aléatoire . 38
5. Force d'oscillateur 40
6. Récapitulatif 41

3 : DESCRIPTION QUANTIQUE DU CHAMP ELECTROMAGNETIQUE 42
1. Aspect corpusculaire du champ de rayonnement thermique . . 42
1.1 Lois de Planck et de Wien 42
1.2 Le raisonnement d'Einstein 43
2. Décomposition en modes du champ électromagnétique classique 44
2.1 Équations de Maxwell pour les champs complexes . . . 44
2.2 Décomposition en ondes planes progressives 44
2.3 Décomposition des champs sur une base quelconque de modes 46
2.4 Évolution temporelle 47
3. Quantification du rayonnement libre 50
3.1 Énergie classique du champ de rayonnement 50
3.2 Analogie avec un oscillateur harmonique matériel à une dimension 51
3.3 Quantification du rayonnement 53
3.4 États propres de $\widehat{H}$ 55
4. Changement de base de modes 56
4.1 Transformation unitaire pour les opérateurs de création et d'annihilation 56
4.2 Invariance du vide 58
4.3 Nombre total de photons 59
4.4 Un exemple simple : les modes d'onde stationnaire . . . 60
5. Impulsion et moment cinétique du rayonnement 61
5.1 Impulsion 61
5.2 Moment cinétique 62
5.3 Opérateurs quantiques associés 66
6. États stationnaires du rayonnement 67
6.1 états nombre : notion de photon 67
6.2 Propriétés des photons dans différents modes 68

6.3 L'état fondamental du champ 68
7. Propriétés ondulatoires du champ quantique : valeur du champ électrique dans un état quantique 71
7.1 Champ en représentation de Heisenberg 71
7.2 Cas de l'état nombre ou état de Fock 73
7.3 Cas d'un état quelconque 75
7.4 Cas de l'état cohérent 76
8. Description du champ quantique par la fonction de Wigner . . 78
8.1 Definitions 78
9. Hamiltonien d'interaction entre atome et champ quantique . . 83
9.1 Hamiltonien d'interaction classique en jauge de Coulomb 84
9.2 Hamiltonien "semi-quantique" 84
9.3 Hamiltonien quantique du système atome+champ . . . 86
9.4 Hamiltonien dipolaire électrique 87
9.5 Considérations générales 87
10. Processus d'interaction 88
10.1 Position du problème 88
10.2 Processus du premier ordre 89
10.3 Processus du deuxième ordre 90
11. Photodétection 91

4 : EMISSION SPONTANÉE 95
1. Approche perturbative 95
1.1 Généralités 95
1.2 Règle d'or de Fermi 96
2. Approche non perturbative (Wigner-Weisskopf) 98
2.1 Fonction d'onde du système 98
2.2 Caractéristiques de la fonction d'onde du système . . . 100
2.3 Valeurs de Γ et $\delta\omega$ 102
2.4 État initial atomique quelconque 103
2.5 Champ électrique produit 103
3. Relaxation de l'atome par émission spontanée 104

5 : ATOME A DEUX NIVEAUX ET CHAMP QUASI-RÉSONNANT 106
1. Cas de deux niveaux de longue durée de vie 106
1.1 La précession de Rabi du vecteur de Bloch 107
1.2 Franges de Ramsey 109
1.3 Passage adiabatique rapide 111

1.4 Echos de photons 114
2. Interaction d'un atome avec une impulsion lumineuse 116
2.1 Evolution du vecteur de Bloch dans une impulsion de champ résonnant : théorème de l'aire 116
2.2 Propagation d'une impulsion dans un ensemble dilué d'atomes à deux niveaux résonnants 117
3. Cas d'un niveau excité de courte durée de vie 119
3.1 Caractéristiques du régime stationnaire 119
3.2 Absorption saturée 122
4. Interaction entre un atome à deux niveaux et un mode du champ quantique 125
4.1 Position du problème 125
4.2 Hamiltonien de Jaynes-Cummings 125
4.3 États et énergies propres du système 126
4.4 Transition par passage adiabatique 129
4.5 Effet des termes antirésonnants : déplacement de Bloch-Siegert 129
4.6 Émission spontanée de l'atome à l'intérieur de la cavité 131
4.7 Évolution sous l'effet d'un état nombre 132
4.8 Évolution sous l'effet d'un état cohérent 133
5. Atome à deux niveaux interagissant avec un mode unique du champ en présence de relaxation 139
5.1 Position du problème 139
5.2 Equation d'évolution des opérateurs dipôle et champ . 139
5.3 Régime d'évolution linéaire 140
5.4 Régimes de couplage fort et de couplage faible 141
5.5 Atome à deux niveaux avec émission spontanée interagissant avec un champ laser monomode intense en l'absence de cavité 146
6. Récapitulatif 148

6 : ASSEMBLÉE D'ATOMES A DEUX NIVEAUX ET CHAMP QUASI-RÉSONNANT 149
1. Approche semi-classique 149
1.1 Hamiltonien semi-classique 149
1.2 Vecteur de Bloch collectif 150
1.3 Evolution du système 150
1.4 Cas d'atomes éloignés 152

1.5 Décohérence inter-atomique 153
2. Approche purement quantique 153
2.1 Hamiltonien quantique 153
2.2 Emission spontanée d'un ensemble d'atomes dont un seul est excité 154
2.3 Emission spontanée d'une assemblée d'atomes tous excités : superfluorescence ou superradiance 155
2.4 Couplage avec un mode unique du champ 156
2.5 Equations d'évolution du dipôle total et du champ . . . 157

7 : SYSTÈMES A TROIS NIVEAUX 160
1. Pompage optique 160
1.1 Cas simple 160
1.2 Pompage Zeeman 163
2. Piégeage cohérent de population 164
2.1 Cas de deux niveaux dégénérés 164
2.2 Cas de deux niveaux non dégénérés 165
3. Déplacements lumineux 166
3.1 Approche quantique : doublet Autler-Townes 167
3.2 Limite perturbative pour le déplacement lumineux . . . 168
3.3 Approche par les équations de Bloch 169
3.4 Transparence électromagnétiquement induite 171
3.5 Réduction de la vitesse de propagation d'une impulsion lumineuse 172
4. Sauts quantiques 173

8 : FLUCTUATIONS ET CORRELATIONS QUANTIQUES 178
1. Introduction 178
2. Fluctuations dans l'interaction d'un système à deux niveaux avec un champ en l'absence de dissipation 179
2.1 Position du problème 179
2.2 Cas d'un seul atome : "bruit de projection" 180
2.3 Cas de N atomes indépendants 181
2.4 Cas de N atomes couplés de manière cohérente ; approche semi-classique 182
2.5 Cas de N atomes couplés de manière cohérente : approche quantique 184
3. Fluctuations et corrélations en présence de dissipation 185

3.1 Equation de Langevin classique 185
3.2 Equation de Langevin quantique 186
3.3 Dissipation d'un mode du champ dans une cavité avec pertes 187
3.4 Cas d'un système à deux niveaux en présence d'émission spontanée 189
3.5 Théorème de régression quantique 190
4. Corrélations d'intensité lumineuse 191
4.1 Corrélation d'intensité pour des champs classiques . . . 191
4.2 Corrélation d'intensité pour des champs quantiques . . 192
4.3 Signal de photodétection double 193
4.4 Signal de corrélation d'intensité dans la fluorescence d'un atome unique 194

9 : ANNEXE : ELEMENTS SUR LA STRUCTURE DES ATOMES . 197
1. Structure de l'atome d'hydrogène 197
1.1 Hydrogène de Schrödinger 198
1.2 Hydrogène de Dirac 200
1.3 Structure hyperfine 201
1.4 Hydrogène de Lamb 202
1.5 L'hydrogène au début du 21eme siècle 203
2. Structure des atomes à un électron 204
2.1 Electron sans spin 204
2.2 Effet du spin électronique : structure fine 205
2.3 Effet du spin nucléaire : structure hyperfine 206
2.4 l'exemple du Rubidium 207
3. Atomes à plusieurs électrons 209
3.1 Approximation des électrons indépendants 209
3.2 Effet des interactions entre électrons 210
3.3 Atome d'Hélium 211
4. Effet de champs extérieurs sur les niveaux atomiques 212
4.1 Champ magnétique statique : effet Zeeman 212
4.2 Champ électrique statique : effet Stark 215
4.3 Champ électromagnétique oscillant 216

10 :ANNEXE : MATRICE DENSITÉ 218
1. Cas pur 218
1.1 Vecteur d'état 218

1.2 Opérateur densité 219
2. Cas d'un système composite 220
2.1 Notion de trace partielle 221
2.2 Notion d'intrication 222
3. Mélange statistique 223
3.1 Introduction 223
3.2 Superposition d'états et mélange statistique 224
3.3 Propriétés et exemples 225
3.4 Exemples 226
4. Modèle simple de relaxation des cohérences 228
4.1 Établissement de l'équation pilote 228
4.2 Cas particulier 230

Bibliographie 232

INTRODUCTION

Ce cours est consacré à une présentation générale de l'interaction entre la matière et le rayonnement électromagnétique. Ce vaste domaine ne sera évidemment pas traité dans sa totalité dans le présent polycopié. En ce qui concerne le rayonnement, nous nous restreindrons à la lumière formée de photons de faible énergie, du rayonnement radio-fréquence jusqu'au proche UV. La matière ne sera pas traitée non plus dans tous ses détails : on supposera qu'elle constitue un système formé de niveaux discrets bien séparés, et éventuellement d'un continuum. Nous l'engloberons par souci de simplicité sous le mot "atome", mais les phénomènes décrits s'appliqueront pour l'essentiel au cas d'une molécule, plus difficilement à un solide (bandes), bien que beaucoup de phénomènes décrits ici demeurent. Nous n'aborderons pas non plus dans ce cours l'effet de la lumière sur la position des atomes, les aspects quantiques spécifiques qui apparaissent sur la lumière, ni l'optique non-linéaire ou les lasers.

On appelle souvent *Optique Quantique* ce domaine de la physique, car la matière, ou la lumière, ou les deux, sont traitées au niveau des phénomènes microscopiques donc quantiques. Les systèmes étudiés sont souvent complexes. On cherche donc à les simplifier, autant que faire se peut, par des approximations et des hypothèses, dont on verra les plus importantes dans les trois premiers chapitres de ce cours, qui présentent la "boîte à outils" de l'optique quantique. On décrira dans les chapitres ultérieurs un certain nombre d'applications et d'illustrations des méthodes introduites, qui nous permettront de présenter et d'expliquer des phénomènes intéressants, et de citer des expériences récentes.

On trouvera à la fin de ce polycopié des annexes concernant la matrice densité, ou donnant quelques rudiments utiles de physique atomique, ainsi une liste d'ouvrages qui permettent d'approfondir les sujets traités dans ce cours.

Ce polycopié n'est qu'une première ébauche. J'invite les lecteurs qui y détecteraient des coquilles ou des erreurs à me les faire connaître par e-mail à :

fabre@spectro.jussieu.fr.

1. LES APPROCHES PHÉNOMÉNOLOGIQUES

Comment la matière et la lumière interagissent-elles ? C'est une question que les physiciens se sont posés depuis très longtemps. Ils ont constaté que certains corps étaient transparents, d'autres colorés, que certains absorbaient la lumière, d'autres la réfléchissaient selon des règles bien précises, ou la diffusaient dans toutes les directions. Les mécanismes de cette interaction multiforme et souvent complexe ont été longtemps inconnus, et comme toujours en physique, on a exploré le domaine en caractérisant les phénomènes observés par des quantités accessibles à l'expérience, comme l'indice de réfraction $n(\omega)$ (ω : fréquence de la lumière), le coefficient d'absorption $\alpha(\omega)$ ou la section efficace de diffusion $\sigma(\omega)$. On a constaté que, dans les milieux simples comme les milieux dilués, ces quantités présentaient un caractère fortement *résonnant* autour de fréquences caractéristiques ω_i avec des largeurs de résonances γ_i. La recherche de ces données, ou spectroscopie, a été une étape importante dans le débroussaillage du phénomène. Les physiciens ont alors introduit des approches phénoménologiques de cette interaction pour rendre compte de ces données.

1. Le modèle de Lorentz

A la fin du $XIX^{\text{ème}}$ siècle, la nature électromagnétique de la lumière et la structure corpusculaire de la charge électrique sont connues. L'existence de fréquences de résonances ω_i pour les atomes, analogues à ceux d'un oscillateur harmonique, conduit alors Lorentz à introduire le modèle dit de "l'électron élastiquement lié", basé sur un comportement évidemment classique d(un charge ponctuelle soumise à un ptoentiel harmonique et au champ de l'onde électromagnétique incidente.

1.1 Atome de Lorentz isolé

Le champ électrique agissant sur l'atome est pris de la forme :

$$\overrightarrow{E} = \overrightarrow{\varepsilon} E cos\left(\omega t - \varphi\right) \tag{1.1}$$

où $\overrightarrow{\varepsilon}$ est le vecteur polarisation de l'onde. L'équation du mouvement de l'électron, de masse m, de charge (négative) q, assimilé à un oscillateur harmonique de fréquence propre ω_0, s'écrit

$$m\frac{d^2\overrightarrow{r}}{dt^2} = -m\omega_0^2\overrightarrow{r} + qE\overrightarrow{\varepsilon}\cos\left(\omega t - \varphi\right) \tag{1.2}$$

L'atome de Lorentz est essentiellement un *dipôle classique*, de moment dipolaire $\overrightarrow{D} = q\overrightarrow{r}$, dont l'équation d'évolution s'écrit donc :

$$\frac{d^2}{dt^2}\overrightarrow{D} = -\omega_0^2\overrightarrow{D} + \frac{q^2E}{m}\overrightarrow{\varepsilon} cos\left(\omega t - \varphi\right) \tag{1.3}$$

On cherche essentiellement le *mouvement forcé* du dipôle sous l'effet du champ incident oscillant de pulsation ω, et le régime transitoire vers ce régime forcé. On écrit donc $\overrightarrow{D}$ sous la forme

$$\overrightarrow{D}(t) = Re\left[\widetilde{D}\left(t\right)e^{-i\omega t}\overrightarrow{\varepsilon}\right] \tag{1.4}$$

$\widetilde{D}\left(t\right)$ est l'*enveloppe lentement variable* du dipôle oscillant, qui sera constante dans le cas du mouvement forcé. On a choisi d'utiliser une notation complexe où $e^{-i\omega t}$ (et non $e^{i\omega t}$) représente l'oscillation de fréquence ω. On a donc aussi la notation complexe suivante pour le champ appliqué :

$$\widetilde{E} = Ee^{i\varphi} \tag{1.5}$$

L'équation d'évolution de $\widetilde{D}$ s'écrit alors :

$$-\omega^2\widetilde{D} - 2i\omega\frac{d\widetilde{D}}{dt} + \frac{d^2\widetilde{D}}{dt^2} = -\omega_0^2\widetilde{D} + \frac{q^2\widetilde{E}}{m} \tag{1.6}$$

On va supposer que l'enveloppe $\widetilde{D}\left(t\right)$ évolue avec une constante de temps longue devant la période $2\pi/\omega_0$ du champ appliqué. $\frac{d^2\widetilde{D}}{dt^2}$ peut donc être négligé devant $\omega\frac{d\widetilde{D}}{dt}$. Il reste :

$$\frac{d}{dt}\widetilde{D} = i\left(\frac{\omega^2 - \omega_0^2}{2\omega}\right)\widetilde{D} + i\frac{q^2\widetilde{E}}{2m\omega} \tag{1.7}$$

Si on est proche de résonance, $\omega \approxeq \omega_0$, donc :

$$\frac{\omega^2 - \omega_0^2}{2\omega} = (\omega - \omega_0)\frac{\omega + \omega_0}{2\omega} \approx \omega - \omega_0 \tag{1.8}$$

L' équation d'évolution du dipôle de Lorentz s'écrit donc finalement, à l'ordre le plus bas par rapport au désaccord à résonance $\omega - \omega_0$:

$$\frac{d}{dt}\widetilde{D} = i(\omega - \omega_0)\widetilde{D} + i\frac{q^2}{2m\omega_0}\widetilde{E} \tag{1.9}$$

La solution "stationnaire", c'est-à-dire forcée, de cette équation s'écrit :

$$\widetilde{D} = \frac{q^2\widetilde{E}}{2m\omega_0(\omega_0 - \omega)} \tag{1.10}$$

Considérons maintenant l'aspect énergétique de l'interaction atome de Lorentz-champ. On sait que la puissance moyenne transférée de la matière au champ a pour expression :

$$P = -\overline{\overrightarrow{E}.\frac{d\overrightarrow{D}}{dt}} \tag{1.11}$$

où la barre supérieure indique une moyenne temporelle. On a donc :

$$\begin{aligned} P &= -\overline{\left[\mathrm{Re}\widetilde{E}\cos\omega t + \mathrm{Im}\widetilde{E}\sin\omega t\right]\left[-\omega\mathrm{Re}\widetilde{D}\sin\omega t + \omega\mathrm{Im}\widetilde{D}\cos\omega t\right]} && (1.12)\\ &= -\frac{\omega}{2}\left(\mathrm{Re}\widetilde{E}\mathrm{Im}\widetilde{D} - \mathrm{Im}\widetilde{E}\mathrm{Re}\widetilde{D}\right) && (1.13)\\ &= -\frac{\omega}{2}\mathrm{Im}\left(\widetilde{D}\widetilde{E}^*\right) && (1.14) \end{aligned}$$

Posons

$$\widetilde{D} = \varepsilon\widetilde{\alpha}\widetilde{E} \tag{1.15}$$

où

$$\widetilde{\alpha} = \widetilde{\alpha}(\omega) = \alpha' + i\alpha'' \tag{1.16}$$

est la polarisabilité dynamique complexe de l'atome. On a alors :

$$P = -\frac{\omega}{2}\alpha''\left|\widetilde{E}\right|^2 \tag{1.17}$$

Les échanges d'énergie se font par l'intermédiaire de α'', c'est-à-dire de *la partie* de $\overrightarrow{D}$ *qui oscille en quadrature avec* $\overrightarrow{E}$. Dans le cas présent, le coefficient reliant $\widetilde{D}$ à $\widetilde{E}$ est réel, donc $P = 0$. Il n'y a donc pas d'échange d'énergie : le présent modèle ne peut pas rendre compte d'effets d'absorption ou d'amplification du rayonnement, seulement d'effets propagatifs. Il ne permet de calculer que l'indice de réfraction du milieu.

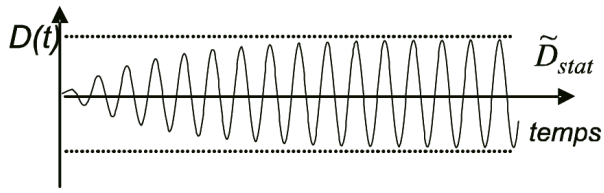

Fig. 1.1: évolution du dipôle atomique dans le cadre du modèle de Lorentz

1.2 Effet de l'environnement : relaxation

Le modèle précédent n'était pas réaliste, car il aboutissait pour une excitation résonnante ($\omega = \omega_0$) à une oscillation d'amplitude divergente pour le dipôle, à cause de l'absence d'amortissement. En fait :

- L'atome n'est pas isolé, mais au milieu d'un grand nombre d'autres : il y a des collisions, des champs créés par les charges ou les dipôles voisins, il y a possibilité de couplage aux vibrations du réseau dans le cas d'un cristal ... : L'énergie d'oscillation est dissipée dans le milieu extérieur, il y a *relaxation.*

- Même isolé, l'atome est nécessairement couplé au rayonnement : l'électron oscillant rayonne et perd de l'énergie. Cela aboutit à une friction effective sur le mouvement du dipôle (réaction de rayonnement). L'équation du dipôle s'écrit alors :

$$\frac{d\widetilde{D}}{dt} = i(\omega - \omega_0)\widetilde{D} - \gamma_d \widetilde{D} + i\frac{q^2\widetilde{E}}{2m\omega_0} \tag{1.18}$$

où la constante d'amortissement γ_d est la somme d'un taux d'amortissement radiatif γ_{rayt} et d'un amortissement collisionnel $\gamma_{collision}$. Le calcul de la puissance dissipée par le rayonnement dipolaire de l'électron [3] montre que γ_{rayt} a pour expression :

$$\gamma_{rayt} = \frac{q^2}{12\pi\epsilon_0 mc^3}\omega_0^3 \tag{1.19}$$

Si on part de $\widetilde{D} = 0$ à l'instant équation $t = 0$, on a une évolution monotone de $\widetilde{D}$ (voir figure (1.1)), qui tend aux temps longs vers une solution stationnaire, qui est la solution forcée :

$$\widetilde{D} = \frac{q^2}{2m\omega_0}\frac{\widetilde{E}}{\omega_0 - \omega - i\gamma_d} \tag{1.20}$$

On a donc une nouvelle expression de la polarisabilité :

$$\widetilde{\alpha} = \frac{q^2}{2m\varepsilon_0\omega_0}\frac{\omega_0 - \omega + i\gamma_d}{(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma_d^2} \tag{1.21}$$

On a maintenant $\alpha' \neq 0$, donc $P \neq 0$: La relaxation permet les échanges d'énergie atome-champ. D'autre part $\alpha' > 0$, donc $P < 0$. Il ne peut y avoir qu'absorption de l'énergie du champ, et donc pas d'amplification possible (pas de laser !). L'énergie du champ ne peut qu'être irréversiblement transférée à l'environnement de l'atome. Enfin on voit que $\widetilde{D}$ est proportionnel à $\widetilde{E}$: la réponse de l'atome au champ est *linéaire*. Il n'y a pas de saturation, ce qui est naturel pour un oscillateur harmonique idéal.

En comparant aux résultats expérimentaux, on constate que ce modèle "naïf" (on sait que l'électron n'est pas lié au noyau par une force élastique, mais coulombienne) donne des résultats en bon accord avec les mesures (pour l'absorption, l'indice, la diffusion de la lumière). L'accord est même très bon quantitativement si :

-on prend pour ω_0 une fréquence de résonance mesurée expérimentalement.

-on multiplie la polarisabilité par un facteur ajustable f_i appelé "force d'oscillateur", et on somme les expressions de $\widetilde{\alpha}$ correspondant aux différentes fréquences ω_i de résonance de l'atome. On a alors une expression phénoménologique de la polarisabilité :

$$\widetilde{\alpha} = \sum_i f_i \frac{q^2}{2m\varepsilon_0\omega_i}\frac{\omega_i - \omega + i\gamma_{di}}{(\omega_i - \omega)^2 + \gamma_{di}^2} \tag{1.22}$$

en très bon accord avec les mesures.

2. Le modèle d'Einstein

En 1916, la notion de photon est connue, de même que l'atome de Bohr, avec ses niveaux stationnaires d'énergie E_i $(i = a, b, ...)$. Bohr a aussi montré que des transitions peuvent être induites entre ces niveaux par un rayonnement de fréquence $\nu = (E_a - E_b)/h$. Mais les physiciens de cette époque ne disposent pas d'une théorie cohérente de l'ensemble de ces phénomènes, qui ne viendra que dans la décennie suivante, avec l'avènement de la Mécanique Quantique. Pour rendre compte du rayonnement à l'équilibre thermique et des échanges d'énergie avec les atomes, Einstein introduit un autre modèle phénoménologique.

2.1 Equation d'évolution des populations

On se restreint ici au cas où l'atome n'a que deux niveaux $|a\rangle, |b\rangle$, non dégénérés pour simplifier. $|a\rangle$ étant le niveau fondamental, et $|b\rangle$ un niveau excité. La fréquence de Bohr pour la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ a pour expression :

$$\omega_0 = \frac{E_b - E_a}{\hbar} \tag{1.23}$$

L'état de l'atome est caractérisé par les *populations* N_a et N_b, qui sont les probabilités d'occupation des niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$. On a donc $N_a + N_b = 1$ si le système est fermé.

Le champ est supposé "incohérent" (il s'agit de rendre compte des propriétés du rayonnement thermique), donc uniquement caractérisé par sa densité spectrale d'énergie :

$$u(\nu) = \frac{dU}{d\nu} \tag{1.24}$$

où U est l'énergie volumique du champ.

Les équations phénoménologiques posées par Einstein s'écrivent :

$$\frac{dN_b}{dt} = -\frac{dN_a}{dt} = -AN_b + BN_a u\left(\nu = \frac{\omega_0}{2\pi}\right) - BN_b u\left(\nu = \frac{\omega_0}{2\pi}\right) \tag{1.25}$$

-1) Le premier terme de cette équation d'évolution caractérise l'émission spontanée du niveau supérieur, dont on constate expérimentalement qu'il peut se désexciter même si $u = 0$. On peut aussi écrire

$$A = \gamma_p \tag{1.26}$$

où γ_p est le taux de désexcitation des populations, qui est, comme le taux γ_d introduit dans la partie précédente, la somme d'une partie radiative γ'_{rad} liée à la fluorescence de l'atome, qui émet un champ dans toutes les directions, et d'une partie collisionnelle γ'_{col}, qui traduit les processus de désexcitation non radiatifs, par exemple ceux qui sont assistés par les vibrations du réseau cristallin dans le cas d'un solide. Noter qu'a priori γ_p et γ_d sont des quantités physiques différentes.

-2) Le deuxième terme, proportionnel à N_a, rend compte de l'absorption de rayonnement par l'atome, qui passe du niveau fondamental dans le niveau excité sous l'effet du rayonnement incident.

-3) Le dernier terme, proportionnel à N_b, décrit le phénomène d'émission stimulée, ou induite, de rayonnement par l'atome, qui passe du niveau

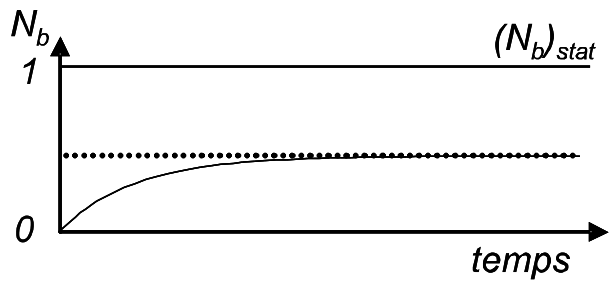

Fig. 1.2: évolution temporelle de la population de l'état excité dans le cadre du modèle d'Einstein

excité au niveau fondamental sous l'effet du rayonnement incident. On sait que ce terme, moins intuitif à introduire phénoménologiquement, a dû être ajouté par Einstein pour obtenir la formule de Planck du rayonnement thermique lorsque les populations des niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ sont donnés, à l'équilibre thermique, par la formule de Boltzmann.

Si on résout cette équation d'évolution en supposant qu'à $t = 0$ l'atome est non excité ($N_a = 1$, $N_b = 0$), on obtient la courbe de la figure (1.2) : il y a évolution monotone vers un état final stable caractérisé par

$$(N_b)_{stat} = \frac{B}{\gamma_P + 2Bu} u \tag{1.27}$$

- Si u est faible ($u << \gamma_P/B$), $(N_b)_{stat}$ est proportionnel à u. Il y a réponse linéaire de l'atome au champ incident.

- Si le champ est très intense ($u >> \gamma_P/B$), $(N_b)_{stat}$, et donc aussi $(N_a)_{stat}$, tend vers $\frac{1}{2}$. Il y a *saturation* de la réponse à très forte intensité. On remarque qu'il n'y a jamais dans ce modèle transfert total du système de l'état $|a\rangle$ vers l'état $|b\rangle$.

2.2 Énergie transférée de l'atome au champ appliqué

Le champ électromagnétique appliqué a une énergie qui diminue, ou augmente, de la quantité $\hbar\omega_0$ chaque fois qu'il y a une transition de $|b\rangle$ vers $|a\rangle$ due aux processus 2) ou 3). Le processus 1), quant à lui, augmente l'énergie du champ rayonné dans toutes les directions. La puissance transférée au champ s'écrit donc :

$$P = -\hbar\omega_0 \left(\frac{dN_b}{dt}\right)_{2),3)} = \hbar\omega_0 B \left(N_b - N_a\right) u \left(\frac{\omega_0}{2\pi}\right) \tag{1.28}$$

On voit que $P < 0$ si $N_a > N_b$, ce qui est le cas le plus courant, $|a\rangle$ étant le niveau fondamental. L'absorption domine dans ce cas, et il y a atténuation du faisceau appliqué. Par contre, $P > 0$ si $N_a < N_b$. L'émission stimulée domine, et il y a donc amplification du champ appliqué dans le cas d'une inversion de population.

En conclusion, ce modèle phénoménologique s'avère être lui aussi un très bon modèle : Il donne bien le rayonnement thermique, pour lequel il a été développé, mais il rend aussi compte de manière quantitative du fonctionnement de la plupart des lasers, si l'on introduit les constantes A et B à partir des résultats de mesure.

On constate cependant que ce modèle est incomplet, car *il ne traite pas des phases des oscillations du champ et du dipôle atomique*, qui interviennent nécessairement dans le problème, surtout quand on veut décrire un système aussi cohérent qu'un laser. Ce défaut du modèle d'Einstein est parfois comblé par l'hypothèse supplémentaire introduite dans le modèle que le champ émis par émission stimulée est en phase avec le champ incident. On trouve même dans certains ouvrages l'affirmation que le "photon émis par émission stimulée est en phase avec le photon incident". Nous verrons dans le chapitre (3) que ce type d'assertion, qui mêle propriétés ondulatoire et corpusculaire du rayonnement, n'a aucun sens précis. Enfin, le lien avec le modèle précédent n'est pas établi, et on ne sait pas ce qui se passe dans le cas d'un champ non résonnant avec la transition atomique ($\omega \neq \omega_0$).

3. *Récapitulatif*

L'introduction de ces deux modèles phénoménologiques, à bien des égards très complémentaires, nous a permis d'introduire les paramètres importants pour l'interaction matière rayonnement :

- Le dipôle atomique $\overrightarrow{D}$;
- Les populations N_a, N_b.

On a aussi vu le rôle essentiel des relaxations γ_d, γ_p dans la dynamique du problème, pour obtenir une évolution monotone de l'atome vers un état stationnaire, ainsi que pour les échanges énergétiques.

2. APPROCHE SEMI-CLASSIQUE

Les années 20 voient l'avènement de la Mécanique Quantique, et ses succès pour expliquer en particulier la structure atomique. Pour décrire dans le cadre de cette théorie l'interaction de l'atome avec un champ électromagnétique imposé de l'extérieur, une première approche consiste à rajouter dans l'hamiltonien de l'atome les termes correspondant à l'interaction avec un champ électromagnétique classique.

On ne fait dans cette approche que la moitié du travail (d'où son nom, mais il faudrait plutôt parler d'approche "semi-quantique"), puisque le champ n'est pas traité de manière quantique. Il s'avère toutefois que cette approche donne une description valable des phénomènes dans l'immense majorité des cas et englobe, comme nous allons le voir, les deux approches précédentes.

Nous nous restreindrons dans ce chapitre au comportement d'un seul atome. Nous traiterons dans le chapitre 6 le cas d'une assemblée d'atomes.

1. Atome isolé

On va dans un premier temps négliger toute interaction de l'atome avec l'extérieur autre qu'avec le champ appliqué.

1.1 Hamiltonien d'interaction (rappels)

On trouvera dans la référence [12], et dans une moindre mesure [3], un exposé détaillé sur les hamiltoniens susceptibles de décrire l'interaction entre un atome quantique et un champ classique. Nous allons ici rappeler quelques résultats qui nous seront utiles par la suite.

En présence d'un champ électromagnétique classique décrit par les potentiels vecteur $\overrightarrow{A}(\overrightarrow{r},t)$ et scalaire $U(\overrightarrow{r},t)$, un hamiltonien possible pour l'électron s'écrit :

$$\widehat{H} = \frac{1}{2m}\left(\widehat{\overrightarrow{p}} - q\overrightarrow{A}\left(\widehat{\overrightarrow{r}},t\right)\right)^2 + qU\left(\widehat{\overrightarrow{r}},t\right) \tag{2.1}$$

Ce hamiltonien est correct pour tout choix de jauge. Il redonne l'équation de Lorentz de la force moyenne. Il faut prendre garde que, dans cette approche, la vitesse de l'électron en présence de $\overrightarrow{A}$ n'est plus $\overrightarrow{v} = \overrightarrow{p}/m$, mais $\overrightarrow{v} = \left(\overrightarrow{p} - q\overrightarrow{A}\right)/m$.

Si on se place en *jauge de Coulomb* :

$$div\overrightarrow{A} = 0 \tag{2.2}$$

dans laquelle le potentiel vecteur $\overrightarrow{A}$ est réduit à sa "partie transverse" (plus précisément transverse dans l'espace de Fourier) $\overrightarrow{A_\perp}$, le champ de rayonnement est décrit *totalement* par son potentiel vecteur $\overrightarrow{A_\perp}$, par les formules

$$\overrightarrow{E} = -\frac{\overrightarrow{\partial A_\perp}}{\partial t}, \overrightarrow{B} = \overrightarrow{rot}\overrightarrow{A_\perp} \tag{2.3}$$

qU est alors uniquement le terme d'énergie coulombienne électrostatique $V(\widehat{r})$ créé par le coeur de l'atome. D'où :

$$\widehat{H} = \frac{1}{2m}\left(\widehat{\overrightarrow{p}} - q\overrightarrow{A_\perp}\right)^2 + V\left(\widehat{\overrightarrow{r}}\right) = \widehat{H}_{at} - \frac{q}{m}\widehat{\overrightarrow{p}}.\overrightarrow{A_\perp} + \frac{q^2}{2m}\overrightarrow{A_\perp^2} \tag{2.4}$$

On a en effet $\widehat{\overrightarrow{p}}.\overrightarrow{A_\perp} = \overrightarrow{A_\perp}.\widehat{\overrightarrow{p}}$:

$$\left[\widehat{p}_i, \widehat{A}_i\right] = \frac{\hbar}{i}\partial_i\widehat{A}_i \Rightarrow \widehat{\overrightarrow{p}}.\overrightarrow{A_\perp} - \overrightarrow{A_\perp}.\widehat{\overrightarrow{p}} = \frac{\hbar}{i}div\overrightarrow{A_\perp} = 0 \tag{2.5}$$

C'est l'hamiltonien dénommé "$\overrightarrow{A}.\overrightarrow{p}$". Noter qu'$\overrightarrow{A_\perp}$ n'est un opérateur quantique que parce qu'on a remplacé dans son expression la variable de position $\overrightarrow{r}$ par l'opérateur $\widehat{\overrightarrow{r}}$. $\widehat{H}_{at}$ est l'hamiltonien atomique, dont les valeurs propres sont les énergies de l'atome considéré.

Dans le cas d'un rayonnement visible, IR, ou micro-onde, on peut souvent faire une simplification supplémentaire : c'est l'*approximation dipolaire ou des grandes longueurs d'onde*. En effet, dans ce cas on a $\langle\ \lambda \gg \langle\overrightarrow{r}\rangle$, et on peut donc remplacer $\overrightarrow{A_\perp}\left(\widehat{\overrightarrow{r}}\right)$ par $\overrightarrow{A_\perp}(\overrightarrow{r}_n)$ ($\overrightarrow{r}_n$ est la position du noyau de l'atome, supposé dans tout ce cours immobile). Le dernier terme figurant dans $\widehat{H}$, qui est du second ordre en $\overrightarrow{A_\perp}$, est alors une simple constante. Il reste :

$$\widehat{H'} = \widehat{H_{at}} - \frac{q}{m}\overrightarrow{A_\perp}\left(\overrightarrow{r}_n\right).\widehat{\overrightarrow{p}} \tag{2.6}$$

Par changement de jauge, on peut alors se ramener à un autre hamiltonien :

$$\widehat{H}'' = \widehat{H}_{at} - q\widehat{\overrightarrow{r}}.\overrightarrow{E}\left(\overrightarrow{r}_n, t\right) = \widehat{H}_{at} - \widehat{\overrightarrow{D}}.\overrightarrow{E}\left(\overrightarrow{r}_n, t\right) \tag{2.7}$$

où $\widehat{\overrightarrow{D}}$ est l'opérateur dipolaire électrique, $\widehat{\overrightarrow{D}} = q\widehat{\overrightarrow{r}}$. C'est l'hamiltonien dipolaire électrique, ou "$\overrightarrow{E}.\overrightarrow{D}$", que nous utiliserons essentiellement dans la suite. Il montre que l'interaction matière rayonnement se fait à cette approximation par l'intermédiaire du dipôle électrique. Notons enfin que ce hamiltonien n'est valable que si on néglige les effets liés au spin de l'électron. Sinon il faut rajouter un terme d'énergie magnétique en $-\frac{q}{m}\widehat{S}.\overrightarrow{B}\left(\overrightarrow{r}_n, t\right)$.

Si l'approximation des grandes longueurs d'onde n'est pas valable, de nouveaux termes s'introduisent, couplant d'autres grandeurs caractéristiques de l'atome aux dérivées successives des champs électriques et magnétiques : c'est le "développement multipolaire" (voir ref (1)).

1.2 Approximation du système à 2 niveaux ; vecteur de Bloch

$\widehat{H}_{at}$ a pour états propres les états discrets $|a\rangle$, $|b\rangle$, ...,, d'énergies $E_a, E_b, ...$, et le continuum $|E\rangle$. L'état atomique le plus général s'écrit donc :

$$|\Psi\rangle = \sum_{i=a,b,...} c_i(t)e^{-iE_it/\hbar}\,|i\rangle + \int c\left(E\right)(t)e^{-iEt/\hbar}\,|E\rangle\,dE \tag{2.8}$$

Les coefficients de la décomposition sont écrits sous la forme $c_i(t)e^{-iE_it/\hbar}$ pour que le coefficient $c_i(t)$ soit constant en l'absence d'interaction avec le champ appliqué ("représentation d'interaction"). L'espace de Hilbert des états atomiques est de dimension infinie, et difficile à manipuler. Le problème se simplifie si on suppose le champ appliqué $\overrightarrow{E} = E\overrightarrow{\varepsilon}cos\left(\omega t - \varphi\right)$ quasi-résonnant sur la seule transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ (de fréquence de Bohr ω_0). La fonction d'onde se décompose alors uniquement sur les deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$, et tous les autres niveaux peuvent être ignorés :

$$|\Psi\rangle \approx c_a\left(t\right)e^{-iE_at/\hbar}\,|a\rangle + c_b\left(t\right)e^{-iE_bt/\hbar}\,|b\rangle \tag{2.9}$$

On appellera ω_0 la fréquence de Bohr associée à cette transition :

$$\hbar\omega_0 = E_b - E_a \tag{2.10}$$

Il est commode de décrire le système à deux niveaux par un nouvel objet mathématique, le vecteur de Bloch $\vec{U}$ (figure (2.1). Il permet d'utiliser des

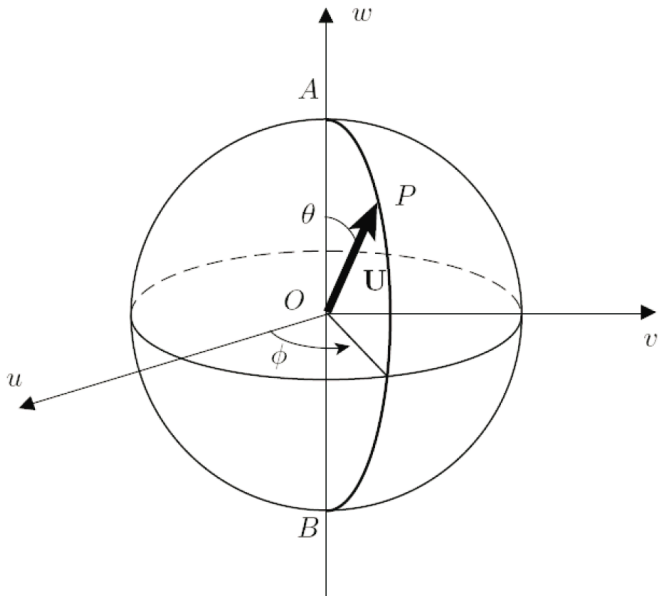

Fig. 2.1: Vecteur de Bloch d'un système à deux niveaux (l'axe Ow pointe en fait vers le bas)

représentations géométriques qui permettent de simplifier la description des phénomènes. Ce vecteur est défini par :

$$\vec{U} =< \hat{\vec{s}} >= \frac{1}{2} < \vec{\sigma} > \tag{2.11}$$

où $\vec{\sigma}$ est l'opérateur vectoriel dont les trois composantes sont les trois matrices de Pauli [1] qui s'écrivent sur la base $|b\rangle$, $|a\rangle$:

$$\sigma_x = \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ 1 & 0 \end{bmatrix} \quad \sigma_y = \begin{bmatrix} 0 & -i \\ i & 0 \end{bmatrix} \quad \sigma_z = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \tag{2.12}$$

$\hat{\vec{s}} = \frac{1}{2}\vec{\sigma}$ est un vecteur qui a les propriétés d'un moment cinétique 1/2. Le vecteur de Bloch est donc la valeur moyenne du "spin fictif" associé au système à deux niveaux. Ce spin fictif devient un "vrai spin" lorsque le système à deux niveaux est constitué par les deux sous-niveaux Zeeman $m = \pm 1/2$ d'un spin 1/2, et la transition entre ces deux niveaux sous l'effet d'un champ

1. Rappelons quelques propriétés des matrices de Pauli σ_i $(i =, y, z)$ qui pourront nous être utiles : $\sigma_i^2 = 1$, $Tr\sigma_i = 0$, $\sigma_i\sigma_j = -\sigma_j\sigma_i = i\sigma_k$ pour toute permutation (i, j, k) paire.

magnétique oscillant s'appelle alors *résonance magnétique*, phénomène qui a fait, et fait toujours, l'objet de recherches approfondies, à la fois sur le plan fondamental et appliqué.

Il est utile d'introduire les opérateurs $\hat{s}_+$ et $\hat{s}_-$ de "montée" et de "descente" dans l'échelle des niveaux :

$$\hat{s}_\pm = \hat{s}_x \pm i\hat{s}_y \tag{2.13}$$

qui s'écrivent aussi :

$$\hat{s}_+ = \begin{bmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} = |b\rangle\langle a| \quad \hat{s}_- = \begin{bmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{bmatrix} = (\hat{s}_+)^\dagger = |a\rangle\langle b| \tag{2.14}$$

Si le système à deux niveaux est décrit de manière générale par la fonction d'onde

$$|\Psi\rangle = cos\frac{1}{2}\theta\,|a\rangle + sin\frac{1}{2}\theta e^{i\phi}\,|b\rangle \tag{2.15}$$

le vecteur de Bloch a pour coordonnées les quantités U_x, U_y, U_z telles que

$$U_x + iU_y = \frac{1}{2}sin\theta e^{i\phi} \tag{2.16}$$

$$U_z = \frac{1}{2}cos\theta \tag{2.17}$$

Il a toujours pour longueur 1/2. Son extrémité P se trouve donc sur une sphère de rayon 1/2, appelée "sphère de Bloch". Ses coordonnées polaires sont les angles θ et ϕ.

En l'absence de toute interaction, l'évolution temporelle se traduit par un simple facteur de phase $e^{-i\omega_0 t}$ dans le coefficient de $|b\rangle$, c'est-à dire par une variation du paramètre ϕ : $\phi(t) = \phi - \omega_0 t$. Le vecteur de Bloch tourne donc extrêmement rapidement autour de Oz, à la vitesse angulaire ω_0.

1.3 qubits et quregistres

Un système classique à deux états a b, comme celui d'une mémoire d'ordinateur (un bit, ou "c-bit"), se trouve soit en a (bit 0), soit en b (bit 1). L'informatique actuelle est basée sur la manipulation de *"c-registres"*, formés d'un très grand nombre de c-bits, comme par exemple $(0, 0, 1, 1, 0, 1..)$, et connectés par des opérations logiques simples et séquentielles .

Un système quantique à deux états a beaucoup plus de possibilités qu'un système classique à deux états. Il peut-être "à la fois" dans les deux états,

lorsqu'il se trouve dans une superposition $|\Psi_{bit}\rangle = \alpha|0\rangle + \beta|1\rangle$. Il s'agit d'un *"qubit"*, dont l'évolution obéit aux règles de la mécanique quantique. La variété est encore plus grande lorsqu'on considère les *"quregistres"* formés de N qubits, et la possibilité de manipuler des combinaisons linéaires de type $|\Psi_{reg}\rangle = \sum \alpha_i |0,0,1,1,0,1..\rangle$, où la somme s'étend sur tous les nombres binaires comme 001101 variant entre 0 et 2^N.

La manipulation d'un très grand nombre de qubits et les opérations susceptibles de connecter les quregistres, font l'objet d'un domaine en développement rapide à l'heure actuelle, celui du traitement quantique de l'information, ou "informatique quantique" (quantum computing). On a pu montrer que cette nouvelle informatique avait un grand intérêt dans les problèmes de "choix", où il faut faire un grand nombre d'essais au hasard pour trouver la solution (trouver un élément particulier dans une liste, factoriser un grand nombre). En informatique classique, on essaie successivement toutes les valeurs possibles pour un c-registre de N c-bits. En informatique quantique, on essaie des quregistres, donc des états quantiques du type $|\Psi_{reg}\rangle$, qui contiennent "à la fois" toutes les valeurs possibles des registres classiques. On a montré théoriquement qu'on a des procédures plus rapides avec des q-registres qu'avec des c-registres, lorsque N est très grand.

Mais la réalisation pratique d'un tel dispositif se heurte à un problème majeur : les cohérences quantiques sont d'autant plus fragiles que N est grand. Elles relaxent très vite vers 0, et les q-registres se muent alors en superpositions statistiques "ordinaires " de c-registres. Le chemin est donc encore très long qui mène à l'ordinateur quantique avec N grand.

1.4 Hamiltonien dipolaire électrique pour le système à deux niveaux

L'hamiltonien atomique du système à deux niveaux s'écrit sous la forme d'une matrice 2×2 diagonale :

$$\widehat{H}_{at} = \begin{bmatrix} E_b & 0 \\ 0 & E_a \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \hbar\omega_0 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} \tag{2.18}$$

alors que l'opérateur dipolaire électrique s'écrit a priori

$$\widehat{\overrightarrow{D}} = \begin{bmatrix} \overrightarrow{d_{bb}} & \overrightarrow{d_{ba}} \\ \overrightarrow{d_{ab}} & \overrightarrow{d_{aa}} \end{bmatrix} \tag{2.19}$$

Dans tout état stationnaire d'un atome $\langle i|\,\widehat{\overrightarrow{D}}\,|i\rangle = \overrightarrow{0}$, car il n'y a pas de direction privilégiée (le système est invariant par rotation). On a alors $\overrightarrow{d_{aa}} = \overrightarrow{d_{bb}} = \overrightarrow{0}$. Dans la suite on supposera $\overrightarrow{d_{ab}}$ réel pour simplifier.

Si l'atome est mis en présence d'un champ électrique

$$\vec{E} = E\vec{\varepsilon}cos(\omega t + \phi) = \vec{\varepsilon}Re(\tilde{E}e^{-i\omega t}) \quad \tilde{E} = Ee^{-i\phi} \tag{2.20}$$

l'hamiltonien total s'écrit, à l'approximation dipolaire électrique :

$$\widehat{H} = \begin{bmatrix} \hbar\omega_0 & 0 \\ 0 & 0 \end{bmatrix} - \begin{bmatrix} 0 & \mathrm{d} \\ \mathrm{d} & 0 \end{bmatrix} E\cos(\omega t + \varphi) \tag{2.21}$$

avec

$$d = \overrightarrow{d_{ab}}.\overrightarrow{\varepsilon} \tag{2.22}$$

que l'on peut aussi écrire :

$$\begin{aligned} \widehat{H} &= \hbar\omega_0|b><b| - dE\cos(\omega t + \varphi)\left(|a><b| + |b><a|\right) && (2.23) \\ &= \hbar\omega_0(\frac{1}{2} + \hat{s}_z) - dE\cos(\omega t + \varphi)\left(\hat{s}_+ + \hat{s}_-\right) && (2.24) \end{aligned}$$

1.5 Hamiltonien séculaire

La première étape pour simplifier le problème consiste à passer dans le *"référentiel tournant forcé"*, c'est-à-dire à faire subir au vecteur d'état décrivant le système la transformation unitaire $\hat{U}_f = exp\,(i\omega t\hat{s}_z)$. Dans le repère du vecteur de Bloch, il s'agit d'une rotation autour de Oz d'un angle $-\omega t$. L'équation d'évolution du vecteur d'état transformé $|\tilde{\psi}\rangle = \hat{U}_f|\psi\rangle$ s'écrit alors :

$$\begin{aligned} i\hbar\frac{d}{dt}|\tilde{\psi}\rangle &= -\hbar\omega_0|b><b||\tilde{\psi}\rangle + \hat{U}_f\widehat{H}\hat{U}_f^\dagger|\tilde{\psi}\rangle && (2.25) \\ &= \left[-\hbar(\omega - \omega_0)|b><b| - dE\cos(\omega t + \varphi)\left(\hat{s}_+e^{i\omega t} + \hat{s}_-e^{-i\omega t}\right)\right]|\tilde{\psi}\rangle \end{aligned}$$

En effet, en utilisant le fait que la transformation est une rotation dans l'espace du vecteur de Bloch, on voit que : $exp\,(i\omega t\hat{s}_z)\,\hat{s}_+exp\,(-i\omega t\hat{s}_z) = \hat{s}_+e^{i\omega t}$

L'approximation séculaire consiste à *ne garder dans le nouvel hamiltonien que les termes statiques*, dont les effets s'accumulent au cours de l'évolution, alors que les autres termes, oscillant rapidement à la fréquence 2ω, ont des

effets qui se moyennent à zéro en première approximation (on verra plus loin l'erreur faire lorsqu'on effectue une telle approximation). On a alors :

$$i\hbar\frac{d}{dt}|\tilde{\psi}\rangle = \widehat{H}_{sec}|\tilde{\psi}\rangle \tag{2.26}$$

avec le Hamiltonien séculaire donné par :

$$\begin{aligned}\widehat{H}_{sec} &= -\hbar\delta(\hat{s}_z + \frac{1}{2}) + \frac{1}{2}\hbar\Omega_R\left(\hat{s}_+ e^{-i\phi} + \hat{s}_- e^{i\phi}\right) &(2.27)\\ &= -\hbar\delta(\hat{s}_z + \frac{1}{2}) + \hbar\Omega_R\left(\hat{s}_x\cos\phi + \hat{s}_y\sin\phi\right) &(2.28)\end{aligned}$$

où l'on a posé $\Omega_R = -dE/\hbar$ (*"pulsation de Rabi"*) et $\delta = \omega - \omega_0$.

1.6 Evolution du système

On a maintenant un hamiltonien indépendant du temps, et donc une résolution immédiate de l'équation de Schrôdinger :

$$|\tilde{\psi}(t)\rangle = exp\left(-i\widehat{H}_{sec}t/\hbar\right)|\tilde{\psi}(0)\rangle \tag{2.29}$$

Mis à part le terme de phase $e^{i\delta t/2}$ l'opérateur d'évolution $exp\left(-i\widehat{H}_{sec}t/\hbar\right)$ est une *rotation dans l'espace du vecteur de Bloch "forcé"* (figure 2.2), car le Hamiltonien séculaire est linéaire par rapport aux composantes de l'opérateur moment cinétique. Le vecteur de rotation $\vec{\Omega}$ dans cet espace (qui rappelons-le, tourne à la fréquence ω autour de Oz) a pour composantes :

$$\Omega_x = \Omega_R\cos\phi \quad \Omega_y = \Omega_R\sin\phi \quad \Omega_z = -\delta \tag{2.30}$$

Il y a donc *précession du vecteur de Bloch* autour de la direction de $\vec{\Omega}$ d'un angle $|\vec{\Omega}|t$, avec

$$|\vec{\Omega}| = \sqrt{\Omega_R^2 + \delta^2} \tag{2.31}$$

On a représenté sur la figure (2.3) l'évolution temporelle de la population du niveau excité N_b et de la quantité $\mathrm{Im}\widetilde{D}$ lorsque le système est dans l'état fondamental $|a\rangle$ à l'instant $t = 0$, à résonance exacte ($\delta = 0$) et avec $\phi = 0$. On voit que le système présente un comportement oscillant sur ces deux observables (deux fois plus rapide sur la cohérence que sur la population) : ce sont les *oscillations de Rabi*. Remarquons qu'il n'y a pas de régime

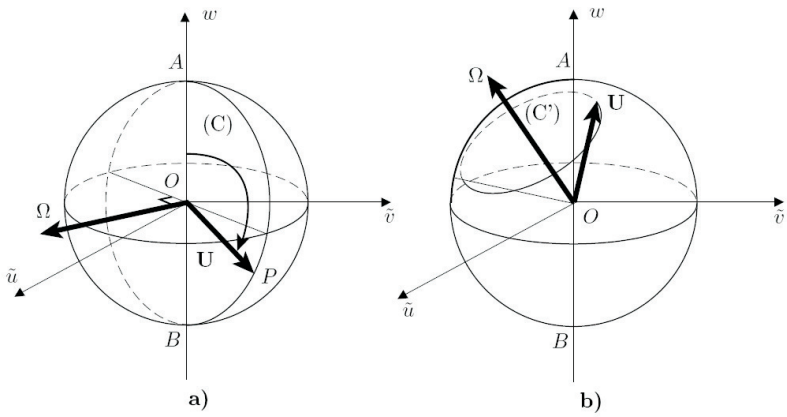

Fig. 2.2: Évolution du vecteur de Bloch dans le repère tournant à la fréquence ω dans le cas résonnant (a) et non-résonnant (b)

stationnaire atteint, et que $\mathrm{Im}\widetilde{D}$, qui est proportionnel, et de signe opposé, à la puissance transférée de l'atome au champ, change de signe toutes les demies périodes de Rabi : le transfert énergétique se fait alternativement des atomes vers le champ et du champ vers les atomes.

2. Effet de l'environnement : équations de Bloch

Il faut maintenant tenir compte de l'environnement : l'atome fait nécessairement partie d'un système plus gros, à cause de son couplage aux autres atomes et au champ de rayonnement.

2.1 Matrice densité

Si l'on s'intéresse à l'évolution de l'atome seulement, on sait qu'on ne peut plus le décrire en termes de fonction d'onde et qu'il faut utiliser la matrice densité ρ. Dans le cas présent où on ne s'intéresse qu'à un système à 2 niveaux, ρ est une matrice 2×2 :

$$\begin{bmatrix} \rho_{bb} & \rho_{ab} \\ \rho_{ba} & \rho_{aa} \end{bmatrix} \tag{2.32}$$

avec $\rho_{aa} + \rho_{bb} = 1$. $\rho_{aa} = N_a$ et $\rho_{bb} = N_b$ sont les populations des deux niveaux, que nous avons rencontrées dans le modèle d'Einstein. ρ_{ba} est la

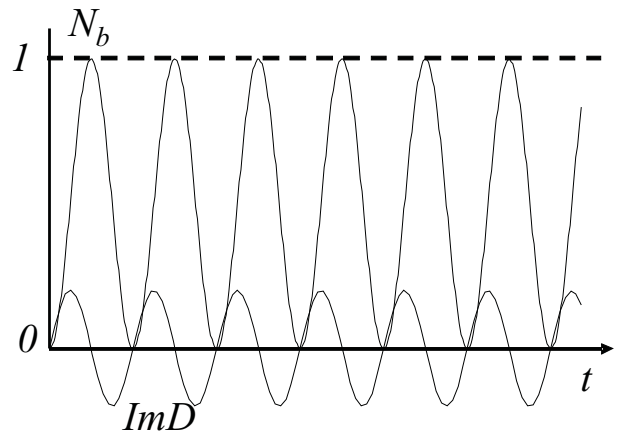

Fig. 2.3: Évolution de la population N_b et du dipôle atomique en l'absence de relaxation (cas résonnant)

"cohérence", qui est directement relié au dipôle :

$$\left\langle \widehat{\vec{D}} \right\rangle = Tr\rho\widehat{\vec{D}} = \mathrm{Re}\left(2\,\vec{d}\,\rho_{ba}\right) \tag{2.33}$$

$2\,\vec{d}\,\rho_{ba}$ est le donc le dipôle complexe, et $2\,\vec{d}\,\widetilde{\rho}_{ba} = 2\,\vec{d}\,\rho_{ba}e^{i\omega t}$ est l'enveloppe $\widetilde{D}$ lentement variable de ce dipôle introduite à propos du modèle de Lorentz. On voit donc que parmi les paramètres qui décrivent l'état de l'atome, Lorentz ne s'est en quelque sorte intéressé qu'aux cohérences et Einstein qu'aux populations.

Le vecteur de Bloch s'écrit maintenant :

$$\vec{U} = Tr\rho\hat{\vec{s}} \tag{2.34}$$

Il est facile de voir que l'on a :

$$U_x + iU_y = \rho_{ba} \tag{2.35}$$

$$U_z = \frac{1}{2}\left(\rho_{bb} - \rho_{aa}\right) \tag{2.36}$$

La projection du vecteur de Bloch sur l'axe Oz est, à un facteur 1/2 près, l'inversion de population sur la transition considérée, tandis que sa projection sur le plan xOy donne l'affixe de la cohérence complexe ρ_{ba}. Lorsque celle-ci est non nulle, le vecteur de Bloch n'est pas aligné sur l'axe $0z$, il y a

de la *cohérence quantique* dans le système atomique : l'atome est dans une superposition de l'état inférieur et de l'état supérieur qui n'est pas une simple superposition statistique. Un tel état est un objet quantique intéressant, un peu difficile à imaginer, qui possède un dipole moyen, alors que ni $|a\rangle$, ni $|b\rangle$ n'en ont. On peut s'en faire une idée à l'aide d'un autre problème de dimension 2, celui de la polarisation de la lumière. L'analogue du vecteur de Bloch est la *sphère de Poincaré* : un état pur correspond à une polarisation parfaitement déterminée (circulaire pour un point représentatif sur l'axe Oz, rectiligne s'il est dans le plan xOy), un cas non pur à une polarisation dite "partielle". La lumière naturelle, non polarisée, est représentée par l'origine des coordonnées. L'existence d'une cohérence correspond à l'existence d'une certaine proportion de polarisation rectiligne dans l'état de la lumière.

L'évolution spontanée, c'est-à-dire en l'absence d'interaction avec tout champ, de la matrice densité est $\rho_{ba}(t) = \rho_{ba}(0)\, e^{-i\omega_0 t}$, les populations restant constantes. Pour le vecteur de Bloch, il s'agit d'une rotation autour de l'axe Oz.

Le vecteur de Bloch permet d'écrire la matrice densité sous la forme :

$$\rho = \frac{1}{2}\mathbf{I} + \vec{\mathbf{U}} \cdot \hat{\sigma} \tag{2.37}$$

On en déduit :

$$|\vec{U}|^2 = \frac{1}{2}(Tr\rho^2 - \frac{1}{2}) \tag{2.38}$$

Il en résulte que $|\vec{U}|^2 \leq \frac{1}{4}$: le point P est donc à l'intérieur de la sphère de Bloch dans le cas général. La quantité $Tr\rho^2$, appelée *pureté* de l'état, permet donc d'évaluer si le système est dans un cas pur ($Tr\rho^2 = 1$), descriptible plus simplement par un vecteur d'état, ou dans un mélange statistique ($Tr\rho^2 < 1$). Sa valeur minimale est dans le cas présent 1/2, lorsque le vecteur de Bloch est le vecteur nul. Un tel vecteur de Bloch décrit un mélange statistique équiréparti des deux états atomiques.

Considérons deux matrices densités différentes ρ_1 et ρ_2 décrites par les vecteurs de Bloch $\vec{U}_1$ et $\vec{U}_2$. A partir de l'expression précédente, il est facile de voir que l'on a pour le recouvrement de ces deux états $Tr\rho_1\rho_2$:

$$Tr\rho_1\rho_2 = 2\left(\frac{1}{4} + \vec{U}_1 \cdot \vec{U}_2\right) \tag{2.39}$$

Il n'est nul que si les deux vecteurs ont pour longueur 1/2 et pointent dans des directions opposées, correspondant à deux états purs orthogonaux.

2.2 Evolution de la matrice densité sous l'effet du seul champ

Dans le référentiel tournant forcé (tournant à la fréquence ω), les composantes de la matrice densité $\widetilde{\rho}$ s'écrivent :

$$\widetilde{\rho}_{ba} = \rho_{ba} e^{i\omega t} \quad \widetilde{\rho}_{aa} = \rho_{aa} \quad \widetilde{\rho}_{bb} = \rho_{bb} \tag{2.40}$$

de sorte que $2d\widetilde{\rho}_{ba} = \widetilde{D}$.

Sous l'effet du seul champ et en l'absence de relaxation, $\widetilde{\rho}$ évolue selon l'équation suivante à l'approximation séculaire vue dans le paragraphe précédent :

$$\frac{d}{dt}\widetilde{\rho} = \frac{1}{i\hbar}\left[\widehat{H}_{sec}, \widetilde{\rho}\right] \tag{2.41}$$

ce qui donne pour les composantes :

$$\frac{d}{dt}\rho_{bb} = -\frac{d}{dt}\rho_{aa} + \frac{d}{\hbar} Im(\widetilde{\rho}_{ba}\widetilde{E}^*) \tag{2.42}$$

$$\frac{d}{dt}\widetilde{\rho}_{ba} = i\delta\widetilde{\rho}_{ba} - i\frac{d}{2\hbar}\widetilde{E}\left(\rho_{bb} - \rho_{aa}\right) \tag{2.43}$$

La première équation montre que, lorsque $\phi = 0$, les transferts de population, donc les échanges énergétiques, sont proportionnels à la partie imaginaire du dipôle complexe, qu'on avait déjà vu par une autre approche dans le premier chapitre. La deuxième montre que l'évolution de la cohérence est liée à la différence des populations : l'interaction matière-rayonnement est donc essentiellement un couplage mutuel entre dipôle et populations.

La résolution de ces équations redonne évidemment les oscillations de Rabi, puisque pour le moment nous n'avons fait que récrire en termes de matrice densité l'équation de Schrödinger de la section précédente. Il faut maintenant rajouter l'effet de la relaxation.

2.3 Evolution en présence de relaxation

Le système atome+environnement est isolé, donc hamiltonien. La matrice densité ρ_{tot} qui le décrit obéit à l'équation :

$$i\hbar\frac{d}{dt}\rho_{tot} = \left[\widehat{H}_A + \widehat{H}_R + \widehat{H}_{AR}, \rho_{tot}\right] \tag{2.44}$$

$\widehat{H}_A$ est l'hamiltonien de l'atome en interaction avec le champ, que nous venons de considérer, $\widehat{H}_R$ est l'hamiltonien de l'environnement ou "réservoir" (ou

"bain"), $\widehat{H}_{AR}$ décrit leur couplage. On ne s'intéresse qu'à la matrice densité réduite, obtenue après trace partielle sur les variables du réservoir, $\rho_A = Tr_R \rho_{tot}$. La théorie de la relaxation montre que l'équation pour ρ_A se met sous la forme :

$$\frac{d}{dt}\rho_A = \frac{1}{i\hbar}\left[\widehat{H}_A, \rho_A\right] + \mathcal{L}_R\left(\rho_A\right) \tag{2.45}$$

où $\mathcal{L}_R$ est un opérateur de relaxation agissant sur ρ_A, et qui ne peut pas se mettre sous la forme d'un commutateur. Moyennant certaines approximations et hypothèses sur le réservoir, et en supposant que le niveau $|a\rangle$ est fondamental, on montre qu'on peut écrire :

$$\frac{d}{dt}\rho_{bb} = \frac{1}{i\hbar}\left(\left[\widehat{H}_A, \rho_A\right]\right)_{bb} - \gamma_p \rho_{bb} \tag{2.46}$$

$$\frac{d}{dt}\rho_{ba} = \frac{1}{i\hbar}\left(\left[\widehat{H}_A, \rho_A\right]\right)_{ba} - \gamma_d \rho_{ba} \tag{2.47}$$

On a toujours $\rho_{aa} = 1 - \rho_{bb}$, car le système formé des niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ reste toujours fermé, même en présence de relaxation. On retrouve les taux de relaxation des populations (γ_p) et de la cohérence ou du dipôle (γ_d) qui avaient été introduits respectivement dans les modèles d'Einstein et de Lorentz. La théorie de la relaxation nous permet de les calculer si l'on connaît la forme de l'interaction avec l'environnement. Une notation souvent utilisée, notamment en théorie de la résonance magnétique, consiste à écrire :

$$\gamma_p = \frac{1}{T_1} \qquad \gamma_d = \frac{1}{T_2} \tag{2.48}$$

T_1 est la durée de vie de la population, T_2 la durée de vie de la cohérence ou du dipôle.

- Si l'atome est isolé, ou s'il est dans *un milieu extrêmement dilué*, le seul couplage de l'atome avec son environnement est celui lié au rayonnement (émission spontanée). On étudiera en détail ce phénomène dans le chapitre 5, une fois connue la quantification du rayonnement. En dépit de l'origine quantique du phénomène, son effet sur l'atome seul peut être pris en compte dans les équations semi-classiques. On montre qu'on a alors :

$$\gamma_p = \Gamma_{sp} \qquad \gamma_d = \frac{\Gamma_{sp}}{2} \tag{2.49}$$

où Γ_{sp} est le taux d'émission spontanée que nous calculerons dans le chapitre 5.

- Si le *milieu est dense*, il faut tenir compte de l'effet des collisions, de l'interaction avec les phonons du réseau, etc... . La relaxation est alors beaucoup plus rapide et on a dans la plupart des cas :

$$\gamma_d \gg \gamma_p \tag{2.50}$$

La relaxation d'un dipôle est beaucoup plus rapide que celle d'une population. Il est en effet beaucoup plus facile de brouiller une phase (ce qui aboutit à détruire le dipôle, ou la cohérence) que de modifier une énergie (nécessaire pour détruire la population).

2.4 Équations de Bloch (cas d'une transition entre niveau fondamental et niveau excité)

Les équations d'évolution du système à deux niveaux soumis à une onde quasi-résonnante en présence de relaxation s'écrivent donc :

$$\frac{d}{dt}\rho_{bb} = -\gamma_p \rho_{bb} + \frac{d}{\hbar} Im(\widetilde{\rho}_{ba}\widetilde{E}^*) \tag{2.51}$$

$$\frac{d}{dt}\widetilde{\rho}_{ba} = (i\delta - \gamma_d)\,\widetilde{\rho}_{ba} - i\frac{d}{2\hbar}\widetilde{E}\,(\rho_{bb} - \rho_{aa}) \tag{2.52}$$

que l'on peut aussi écrire en termes de populations N_a, N_b et de dipôle complexe $\widetilde{D} = 2d\widetilde{\rho}_{ba}$:

$$\frac{d}{dt}N_b = -\gamma_p N_b + \frac{1}{2\hbar} Im(\widetilde{D}\widetilde{E}^*) \tag{2.53}$$

$$\frac{d}{dt}\widetilde{D} = (i\delta - \gamma_d)\,\widetilde{D} - i\frac{d^2\widetilde{E}}{\hbar}\,(N_b - N_a) \tag{2.54}$$

Ces deux ensembles d'équation sont les *équations de Bloch optiques*, qui sont très importantes car elles permettent de résoudre un très grand nombre de problèmes en optique quantique. Nous en verrons quelques exemples dans la suite. Remarquons que ce sont des équations du premier ordre.

2.5 Cas d'un système peu excité

Si l'excitation est faible $N_b \approx 0$, donc $N_a \approx 1$, et $N_b - N_a \approx -1$. On a alors :

$$\frac{d}{dt}\widetilde{D} = (i\delta - \gamma_d)\,\widetilde{D} + if\frac{q^2}{2m\omega_0}\widetilde{E} \tag{2.55}$$

avec :

$$f = \frac{2m\omega_0 d^2}{q^2\hbar} \tag{2.56}$$

Cette quantité sans dimension est la force d'oscillateur. On retrouve bien, à cette constante multiplicative près, l'équation d'évolution du dipôle introduite par Lorentz. Le modèle de Lorentz s'applique donc bien aux situations où l'atome est excité par une lumière de faible intensité, comme celle d'une lampe classique (thermique ou à décharge). Notons qu'il y a analogie entre les équations d'évolution d'un atome faiblement excité et celles d'un oscillateur harmonique, mais pas entre les phénomènes : l'électron n'est pas élastiquement lié dans un atome, puisque la force de liaison varie en $1/r^2$ et pas en $-\vec{r}$, mais il s'avère que l'"élastique" (l'oscillateur harmonique classique) est l'objet classique qui a le comportement le plus "quantique". Assimiler un système, quel qu'il soit, à un oscillateur harmonique classique est ainsi un premier pas vers la description quantique de ce système. La théorie semi-classique permet donc d'établir sur des bases solides le modèle phénoménologique de Lorentz. Notons qu'en outre, il permet de calculer la population de l'état excité dans le régime de faible excitation.

2.6 Evolution du système à partir de l'état fondamental dans le cas général

Lorsqu'on résout numériquement les équations de Bloch, on obtient les courbes de la figure (2.4). On observe sur celles-ci des oscillations (analogue à celle de Rabi) qui s'amortissent et aboutissent à un état stationnaire. Ces oscillations ne permettent plus d'atteindre avec une probabilité unité le niveau excité. Lorsque γ_d croît, l'évolution devient monotone et la variation des populations ressemble de plus en plus à celle prévue par Einstein. On va donc s'intéresser plus en détail à ce cas limite.

2.7 Régime de fort amortissement du dipôle

Dans l'équation du dipôle, les termes $\frac{d}{dt}\widetilde{D}$ et $\gamma_d\widetilde{D}$ interviennent au même niveau. Dans le régime de fort amortissement, on va négliger $\frac{d}{dt}\widetilde{D}$ devant $\gamma_d\widetilde{D}$. On obtient alors une équation algébrique pour $\widetilde{D}$ au lieu d'une équation différentielle, qui permet de calculer la valeur à tout instant de $\widetilde{D}(t)$:

$$\widetilde{D}(t) = \frac{i}{\gamma_d - i\delta}\frac{d^2\widetilde{E}}{\hbar}\left(N_a(t) - N_b(t)\right) \tag{2.57}$$

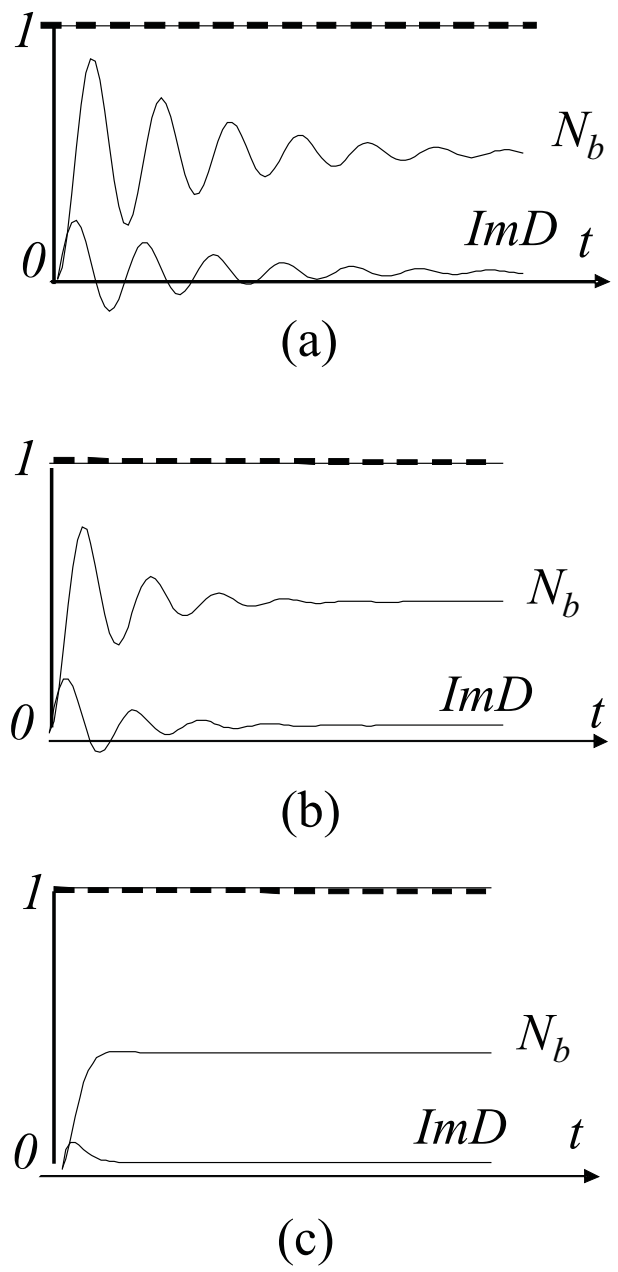

Fig. 2.4: Evolution de la population N_b et du dipôle atomique pour différents amortissements du dipôle : (a) $\gamma_d = \gamma_p/2$ (cas de l'émission spontanée) ; (b) $\gamma_d = 2\gamma_p$; (c)$\gamma_d = 15\gamma_p$ (milieu dense)

Cette expression est valable si $\widetilde{D}(t)$ donné par cette équation, et donc aussi l'inversion de population $N_a - N_b$, évoluent lentement sur une échelle de temps $(\gamma_d)^{-1}$. Dans cette situation, *La variable à relaxation rapide* (le dipôle) *suit adiabatiquement l'évolution temporelle de la variable à relaxation lente* (les populations). Si on introduit cette valeur de $\widetilde{D}$ dans l'équation de N_b, on obtient une équation différentielle pour les seules variables "lentes" N_a et N_b. On dit qu'on a *"éliminé adiabatiquement la variable à amortissement rapide"*. On obtient alors :

$$\frac{d}{dt}N_b = -\gamma_p N_b + \frac{d^2E^2}{2\hbar^2}(N_a - N_b)\frac{\gamma_d}{\delta^2 + \gamma_d^2} \tag{2.58}$$

Il s'agit d'une équation du premier ordre qui relie uniquement les variables "énergétiques" du problème, c'est-à-dire les populations atomiques et le carré du champ, $E^2 = |\tilde{E}|^2$, proportionnel à la densité énergétique

$$U = \frac{1}{2}\varepsilon_0 E^2 \tag{2.59}$$

On constate qu'à cette approximation *les phases ont disparu du problème*. On retrouve ainsi des équations proches de celles du modèle d'Einstein. Elles ne s'appliquent toutefois pas du tout à la même situation, puisque l'équation que nous venons de dériver concerne l'interaction d'un atome avec un champ monochromatique, et pas avec un champ à spectre large comme le rayonnement thermique.

Notons finalement que la présente approche donne en outre la valeur du dipôle atomique, qui s'exprime en fonction de la différence des populations par l'expression donnée au début de ce paragraphe.

2.8 Généralisation des équations de Bloch

Les équations de Bloch s'appliquent aussi au cas où le système atomique n'est pas fermé, comme le cas de deux niveaux excités par exemple (ce système est évidemment important lorsqu'on étudie les lasers) : il faut alors introduire les taux de remplissage représentant le processus de pompage incohérent des niveaux a et b à partir du niveau fondamental, Λ_a et Λ_b, et les taux de départ vers les autres niveaux : γ_b est le taux de départ du niveau supérieur vers tous les niveaux d'énergie inférieure sauf a (il faut donc rajouter γ_p pour trouver le taux total de désexcitation de ce niveau), et γ_a est

le taux de départ du niveau inférieur de la transition vers tous les niveaux d'énergie inférieure. On obtient alors le système d'équations :

$$\frac{d}{dt}\rho_{bb} = \Lambda_b - \gamma_b\rho_{bb} - \gamma_p\rho_{bb} + \frac{d}{\hbar}Im(\widetilde{\rho}_{ba}\widetilde{E}^*) \tag{2.60}$$

$$\frac{d}{dt}\rho_{aa} = \Lambda_a - \gamma_a\rho_{aa} + \gamma_p\rho_{bb} - \frac{d}{\hbar}Im(\widetilde{\rho}_{ba}\widetilde{E}^*) \tag{2.61}$$

$$\frac{d}{dt}\widetilde{\rho}_{ba} = (i\delta - \gamma_d)\,\widetilde{\rho}_{ba} - i\frac{d}{2\hbar}\widetilde{E}\,(\rho_{bb} - \rho_{aa}) \tag{2.62}$$

Il faut prendre garde que le système n'est plus fermé, et que la somme des deux populations n'est plus une constante.

Les équations de Bloch se généralisent aisément au cas où il y a plus de deux niveaux : il faut alors introduire les taux de relaxation et de pompage de chacune des populations et de chacune des cohérences. Nous en verrons un exemple dans le chapitre sur les systèmes à trois niveaux.

3. *Propagation de la lumière dans un ensemble dilué d'atomes à deux niveaux : équations de Maxwell-Bloch*

Nous allons maintenant nous intéresser non pas seulement à l'évolution d'un seul atome, mais à celle du champ lorsqu'il se propage le long de l'axe Oz dans un gaz dilué d'atomes à deux niveaux identiques à celui que nous avons considéré jusqu'à présent. On supposera que les éventuelles cohérences inter-atomiques susceptibles de se bâtir au cours de l'évolution sont rapidement amorties pour qu'on puisse les négliger et supposer les atomes comme indépendants. C'est le cas par exemple dans une assemblée d'atomes en mouvement thermique. On appelle $\mathcal{N}$ la densité de ces atomes.

On négligera pour simplifier toute variation du champ dans le plan xOy perpendiculaire à la propagation. On peut alors écrire le champ complexe sous la forme d'une "quasi onde plane" :

$$E(z,t) = \mathcal{R}e(\tilde{E}(z,t)e^{i(kz-\omega t)}) \tag{2.63}$$

où $k = \omega/c$ et où l'enveloppe $\tilde{E}(z,t)$ varie peu à l'échelle de la longueur d'onde λ et de la période optique T, plus précisément :

$$\tilde{E}(z+\lambda,t) \simeq \tilde{E}(z,t) \quad \frac{\partial}{\partial z}\tilde{E}(z+\lambda,t) \simeq \frac{\partial}{\partial z}\tilde{E}(z,t) \quad \tilde{E}(z,t+T) \simeq \tilde{E}(z,t) \tag{2.64}$$

ce qui implique, en utilisant un développement de Taylor :

$$\lambda\frac{\partial\tilde{E}}{\partial z} \ll \tilde{E} \quad \lambda\frac{\partial^2\tilde{E}}{\partial z^2} \ll \frac{\partial\tilde{E}}{\partial z} \quad T\frac{\partial\tilde{E}}{\partial t} \ll \tilde{E} \quad T\frac{\partial^2\tilde{E}}{\partial t^2} \ll \frac{\partial\tilde{E}}{\partial t} \tag{2.65}$$

Pour trouver l'équation d'évolution du champ dans l'assemblée des atomes neutres et polarisables, il faut utiliser les équations de Maxwell dans un milieu diélectrique, qui s'écrit :

$$\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2 E}{\partial t^2} = \mu_0\frac{\partial^2 P}{\partial t^2} \tag{2.66}$$

où $P(z,t)$ est la densité de polarisation dans le milieu, que l'on écrira aussi sous la forme $\tilde{P}(z,t)e^{i(kz-\omega t)}$, avec une hypothèse de variation lente de l'enveloppe $\tilde{P}(z,t)$ analogue à (2.65). L'équation de propagation du champ s'écrit alors pour les enveloppes, sachant que $\omega = ck$:

$$\frac{\partial^2\tilde{E}}{\partial z^2} + 2ik\frac{\partial\tilde{E}}{\partial z} - \frac{1}{c^2}\frac{\partial^2\tilde{E}}{\partial t^2} + 2i\omega\frac{1}{c^2}\frac{\partial\tilde{E}}{\partial t} = \mu_0\left(\frac{\partial^2\tilde{P}}{\partial t^2} - 2i\omega\frac{\partial\tilde{P}}{\partial t} - \omega^2\tilde{P}\right) \tag{2.67}$$

L'hypothèse d'enveloppe lentement variable (2.65) permet de négliger les dérivées d'ordre les plus élevées et d'aboutir à l'équation :

$$\frac{\partial\tilde{E}}{\partial z} + \frac{1}{c}\frac{\partial\tilde{E}}{\partial t} = \frac{i\omega\mu_0 c}{2}\tilde{P} = \frac{i\omega\mathcal{N}d_{ab}}{\varepsilon_0 c}[\tilde{\rho}_{ba}] \tag{2.68}$$

où l'on a introduit l'expression de la densité complexe de dipôle, $\tilde{P} = 2\mathcal{N}d_{ab}[\tilde{\rho}_{ba}]$, dans laquelle [ ] désigne une moyenne statistique sur les différents atomes interagissant avec l'onde (par exemple une moyenne sur les vitesses).

L'ensemble constitué par l'équation de propagation (2.68) et les équations de Bloch (2.51) s'appelle *équations de Bloch-Maxwell*. Il permet de calculer l'évolution couplée du champ et des atomes. Ces équations sont en particulier souvent utilisées pour déterminer les propriétés du champ laser. Il faut alors introduire dans les équations de Bloch un terme de couplage qui assure l'inversion de population à l'origine de l'amplification de l'onde lors de sa propagation dans le milieu atomique.

4. Interaction avec un champ non monochromatique

4.1 Sources lumineuses stationnaires à spectre large

La plupart des sources lumineuses ont un spectre large. Si le champ qu'elles émettent était certain, sa dépendance temporelle, transformée de

Fourier de la répartition spectrale, aurait l'allure d'une impulsion lumineuse. On constate expérimentalement que ce sont des sources non pulsées, mais stationnaires, ce qui implique qu'elles émettent, non pas un champ certain, mais une *superposition statistique* de champs (par exemple des trains d'onde émis aléatoirement par chacun des atomes de la source, voir figure (2.4)). On peut alors écrire pour un tirage au sort donné :

$$E = \mathrm{Re}\left[\widetilde{E}(t)e^{-i\overline{\omega}t}\right] \tag{2.69}$$

où $\overline{\omega}$ est la fréquence centrale d'émission de la source, et $\widetilde{E}(t)$ un champ aléatoire dont les caractéristiques varient d'un tirage à l'autre et dont le spectre de Fourier ne contient que des composantes de fréquence faible par rapport à $\overline{\omega}$. C'est par exemple le champ formé par la superposition de très nombreux trains d'ondes exponentiels d'amplitude initiale et de constante d'amortissement fixes, mais commençant à des instants aléatoires (figure (2.5)), qui s'écrit :

$$\widetilde{E}(t) = \sum_i \widetilde{E}_i(t) \tag{2.70}$$

$$t > t_i : \quad \widetilde{E}_i(t) = E_0 e^{i\overline{\omega}t_i} e^{-(t-t_i)/T_c} \quad t < t_i \quad \widetilde{E}_i(t) = 0 \tag{2.71}$$

où les instants t_i sont aléatoires.

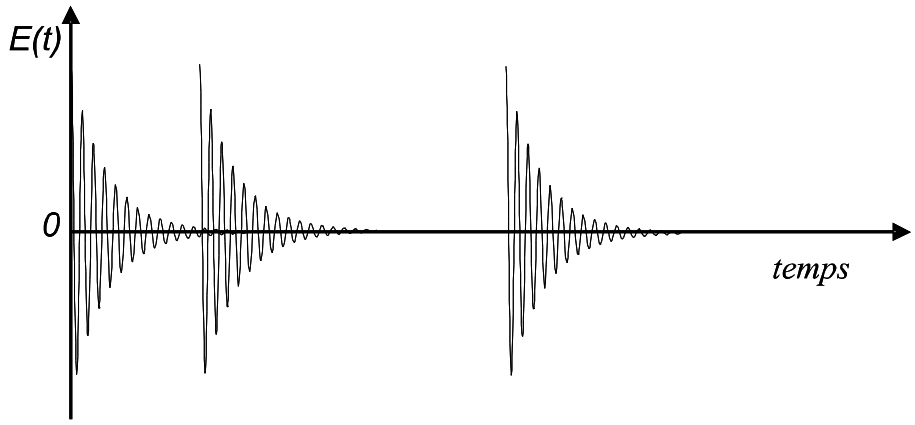

Fig. 2.5: allure du champ émis par une source stationnaire émettant des trains d'ondes amortis à des instants aléatoires

D'une manière générale, on définit la fonction de corrélation du champ

complexe $\widetilde{E}(t)$par :

$$\Gamma_{\widetilde{E}}(t-t') = \overline{\widetilde{E}^*(t)\widetilde{E}(t')} \tag{2.72}$$

où la barre située au dessus de $\widetilde{E}(t)\widetilde{E}^*(t')$ indique une moyenne sur l'ensemble statistique décrivant l'aspect aléatoire de la source (qu'on assimilera souvent à une moyenne temporelle). Dans le cas particulier des trains d'onde exponentiellement amortis, $\Gamma_{\widetilde{E}}(\tau)$ vaut :

$$\Gamma_{\widetilde{E}}(\tau) = \frac{1}{2}E_0^2 N T_c e^{-|\tau|/T_c} \tag{2.73}$$

où N est le nombre moyen d'impulsions par unité de temps.

De manière générale la fonction de corrélation du champ est une fonction dont le module est pair et qui décroît à partir de $\tau = 0$ et tend vers zéro aux temps longs sur un intervalle de temps de l'ordre de T_c, appelé *temps de corrélation* du champ.

D'après le théorème de Wiener-Khintchine, la transformée de Fourier de la fonction de corrélation du champ n'est autre que la *densité spectrale* $S_{\widetilde{E}}(\omega)$ de la quantité $\left|\widetilde{E}(t)\right|^2$, que l'on mesure par exemple à l'aide d'un spectromètre :

$$S_{\widetilde{E}}(\omega) = \frac{1}{2\pi}\int_{-\infty}^{+\infty} d\tau \Gamma_{\widetilde{E}}(\tau) e^{i\omega\tau} \tag{2.74}$$

Dans l'exemple des trains d'onde exponentiels, la densité spectrale a la forme d'une Lorentzienne de largeur $2/T_c$:

$$S_{\widetilde{E}}(\omega) = \frac{NE_0^2}{\pi}\frac{1}{\omega^2 + (1/T_c)^2} \tag{2.75}$$

D'une manière générale, la largeur spectrale $\Delta\omega$ de la source est liée à son temps de corrélation T_c par la relation de Fourier :

$$\Delta\omega\, T_c \simeq 1 \tag{2.76}$$

4.2 Evolution de l'atome en présence du champ aléatoire

L'évolution de la cohérence écrite dans le référentiel "forcé" à la fréquence moyenne du champ $\overline{\omega}$, $\widetilde{\rho}_{ba} = \rho_{ba}e^{i\overline{\omega}t}$, en présence du champ à large spectre est donnée, à l'approximation séculaire, par :

$$\frac{d}{dt}\widetilde{\rho}_{ba} = -[\gamma_d + i\,(\overline{\omega} - \omega_0)]\widetilde{\rho}_{ba} - i\frac{d}{2\hbar}\widetilde{E}(t)\,(\rho_{bb} - \rho_{aa}) \tag{2.77}$$

En effet, l'utilisation de l'approximation séculaire n'est pas restreinte au cas d'un champ strictement monochromatique. Il suffit qu'on puisse l'appliquer pour toutes les composantes spectrales de la source. La solution de cette équation avec comme condition initiale $\rho_{ba}(0) = 0$ est :

$$\widetilde{\rho}_{ba}(t) = -\frac{id}{2\hbar}\int_0^t \widetilde{E}(t')\left(\rho_{bb} - \rho_{aa}\right)(t')e^{\left(i\overline{\delta}-\gamma_d\right)(t-t')}dt' \tag{2.78}$$

avec $\overline{\delta} = \overline{\omega} - \omega_0$. On reporte ensuite cette expression de $\widetilde{\rho}_{ba}(t)$ dans l'équation de Bloch pour les populations et on effectue la moyenne sur l'ensemble statistique. On obtient alors :

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}\rho_{bb} &= -\gamma_p\rho_{bb} - \frac{d^2}{4\hbar^2}\left[\int_0^t dt'\overline{\widetilde{E}^*(t)\widetilde{E}(t')}e^{[i\overline{\delta}-\gamma_d](t-t')}\left(\rho_{bb} - \rho_{aa}\right)(t') + c.c.\right] \\ &= -\gamma_p\rho_{bb} - \frac{d^2}{4\hbar^2}\left[\int_0^t d\tau e^{\left(i\overline{\delta}-\gamma_d\right)\tau}\Gamma_{\widetilde{E}}(\tau)\left(\rho_{bb} - \rho_{aa}\right)(t-\tau) + c.c.\right] \end{aligned} \tag{2.79}$$

où $\tau = t - t'$.

Dans cette expression, l'intégrand est pratiquement nul pour toutes les valeurs de τ grandes devant T_c. On suppose maintenant :

1) que $\rho_{bb} - \rho_{aa}$ *varie lentement sur l'échelle de temps* T_c. On peut alors remplacer $\left(\rho_{bb} - \rho_{aa}\right)(t-\tau)$ par $\left(\rho_{bb} - \rho_{aa}\right)(t)$, qui sort de l'intégrale (il faudra vérifier ultérieurement cette hypothèse). Cela implique en particulier que le temps de relaxation de la population γ_p^{-1} est grand devant T_c. Cette approximation est qualifiée d'approximation de mémoire courte, ou approximation de Markov.

2) qu'on ne s'intéresse qu'à des temps $t \gg T_c$. L'intégrand est alors pratiquement nul entre t et $+\infty$, et on peut étendre la borne de l'intégrale jusqu'à $+\infty$ sans changer sa valeur.

En utilisant ces deux approximations, on obtient pour les populations une équation différentielle linéaire à coefficients constants pour les seules populations prises à l'instant t.

$$\frac{d}{dt}\rho_{bb} = -\gamma_p\rho_{bb} + C\left(\rho_{aa} - \rho_{bb}\right) \tag{2.80}$$

$$C = \frac{d^2}{4\hbar^2}\int_{-\infty}^{+\infty} d\tau e^{i\overline{\delta}\tau-\gamma_d|\tau|}\Gamma_{\widetilde{E}}(\tau) \tag{2.81}$$

Dans le cas où le taux de relaxation du dipôle γ_d est négligeable devant la largeur spectrale de la source, $e^{-\gamma_d|\tau|} \simeq 1$, et l'intégrale est pratiquement

égale à $2\pi S_{\widetilde{E}}\left(\overline{\delta}\right)$, donc proportionnelle à la densité spectrale du champ électrique de la source. Cette quantité est égale, au facteur $1/\pi\varepsilon_0$ près, à la *densité spectrale d'énergie volumique* $u(\nu)$. En posant $C = Bu(\overline{\nu} = \overline{\delta}/2\pi)$, on retrouve dans le cas d'une source large l'équation posée par Einstein.

$$\frac{d}{dt}\rho_{bb}(t) = -\gamma_p\rho_{bb}(t) + Bu\left(\overline{\nu}\right)\left(\rho_{aa} - \rho_{bb}\right)(t) \tag{2.82}$$

avec $B = d^2/(4\pi\varepsilon_0\hbar^2)$. Cette formule est valable pour un rayonnement non monochromatique de direction et de polarisation données. Pour pouvoir l'appliquer au cas du rayonnement thermique, il faut prendre garde que celui-ci est isotrope et de polarisation quelconque, et donc opérer un moyennage sur toutes les directions et sur toutes les polarisations[14].

Dans le cas des trains d'ondes exponentiels, la source a une fonction d'autocorrélation en forme d'exponentielle décroissante sur un temps T_c. On peut dans ce cas obtenir une valeur de C valable quelles que soient les valeurs respectives de $1/T_c$ et γ_d :

$$C = \frac{2d^2}{\varepsilon_0\hbar^2 c}\frac{\frac{1}{T_c} + \gamma_d}{\left(1/T_c + \gamma_d\right)^2 + \left(\omega_0 - \overline{\omega}\right)^2}\Pi \tag{2.83}$$

où Π est le vecteur de Poynting moyen, ou éclairement, (en W/m^2) de la source. On obtient donc une expression analogue à celle obtenue dans le cas monochromatique, mais avec une fonction de distribution spectrale dont la largeur est la somme de la largeur de la source et de la largeur de la réponse atomique.

5. *Force d'oscillateur*

Dans l'approximation du système à deux niveaux, nous avons vu qu'on retrouvait à la limite des faibles intensités lumineuses le modèle de Lorentz à partir du modèle semi-classique, à condition d'introduire un facteur multiplicatif appelé "force d'oscillateur". On peut généraliser ce résultat en tenant compte de tous les niveaux de l'atome, dans le cadre d'une théorie perturbative à l'ordre le plus bas entre l'atome et le champ (justifiée ici par la faible valeur du champ appliqué). On trouve alors la formule :

$$\widetilde{D} = \left[\sum_i f_i \frac{q^2}{2m\omega_i}\frac{\omega_i - \omega + i\gamma_{di}}{(\omega_i - \omega)^2 + \gamma_{di}^2}\right]\widetilde{E} \tag{2.84}$$

qui est bien l'expression phénoménologique introduite à la fin du paragraphe (1.1.2). La "force d'oscillateur" f_i donne en fin de compte l'importance relative dans le résultat final de la contribution du $i^{ème}$ oscillateur.

Cette interprétation est corroborée par le fait que cette quantité est positive et que la somme des forces d'oscillateur pour toutes les transitions vaut 1 :

$$\sum_i f_i = 1 \tag{2.85}$$

6. Récapitulatif

Ce chapitre nous a permis d'introduire les équations de Bloch, qui nous permettront de résoudre un très grand nombre de problèmes en optique quantique. Il nous a permis aussi de mieux comprendre les modèles phénoménologiques introduits par Lorentz et Einstein, et d'en préciser les domaines de validité.

Le modèle de Lorentz est correct dans le cas d'un atome peu excité :

$$N_b \ll 1 \tag{2.86}$$

Le modèle d'Einstein est correct dans le cas où le dipôle atomique est très rapidement amorti par l'environnement, ou bien lorsque la source excitatrice est à spectre large :

$$\gamma_d \gg \gamma_p \tag{2.87}$$

$$\Delta\omega \gg \gamma_d, \gamma_p \tag{2.88}$$

Nous avons aussi vu un certain nombre de méthodes d'approximation que l'on retrouve dans de nombreux domaines de la physique : l'approximation séculaire, consistant à négliger l'effet des composantes haute-fréquence de l'excitation, l'élimination adiabatique des variables rapides en tant que variables dynamiques du problème, qui s'asservissent à l'évolution des variables à amortissement lent ; l'approximation de mémoire courte qui consiste à négliger l'effet de mémoire du système, qui n'évolue que sous l'effet des valeurs instantanées des variables.

3. DESCRIPTION QUANTIQUE DU CHAMP ELECTROMAGNETIQUE

Historiquement, l'aspect quantique du monde physique s'est révélé pour la première fois en 1900 à l'occasion d'études sur le rayonnement, et plus particulièrement sur le rayonnement thermique, dont le comportement à grande fréquence défiait les lois de la physique classique. Il a fallu cependant attendre ensuite la fin des années 1920 pour avoir une description quantique complète et déduite des principes de base de la mécanique quantique du champ électromagnétique.

1. Aspect corpusculaire du champ de rayonnement thermique

1.1 Lois de Planck et de Wien

A la fin du dix-neuvième siècle, les physiciens ont pu déterminer expérimentalement la densité spectrale $u(\nu, T)$ de l'énergie du rayonnement à l'équilibre thermodynamique avec un thermostat complètement absorbant, ou corps noir, de température T. Ils constatèrent que $u(\nu, T)$ décroît et tend vers zéro à grande fréquence. Wien obtint un bon accord entre les données expérimentales haute fréquence et la loi semi-empirique :

$$u(\nu, T) = \alpha \nu^3 e^{-\beta \frac{\nu}{T}} \tag{3.1}$$

Cette formule n'avait pas de base théorique complètemen satisfaisante. Planck, en 1900, trouva une meilleure formule à partir de considérations de physique statistique et de l'hypothèse extrêmement hardie et mystérieuse que les échanges d'énergie avec le thermostat se font par multiples de $h\nu$. Il obtint la célèbre formule :

$$u(\nu, T) = \frac{\alpha \nu^3}{e^{\beta \frac{\nu}{T}} - 1} \tag{3.2}$$

où

$$\alpha = \frac{2h}{c^3}, \beta = \frac{h}{k_B} \tag{3.3}$$

1.2 Le raisonnement d'Einstein

Dans son célèbre article publié en 1905 (Annalen der Physik 17, 132 (1905)), Einstein montre que la loi de Wien implique un aspect corpusculaire du rayonnement, et pas seulement de l'interaction matière-rayonnement, comme Planck le pensait. Son raisonnement est extrêmement astucieux et peu connu. En effet, on ne retient habituellement de cet article que l'explication de l'effet photoélectrique, alors que celle-ci occupe une part très restreinte de l'article.

Le raisonnement d'Einstein part de l'idée que la dépendance de u avec T nous permet de connaître directement l'entropie du système. En effet :

$$\frac{1}{T} = \frac{\partial S}{\partial E} \Rightarrow ds = \frac{du}{T} \tag{3.4}$$

où s est la densité spectrale volumique d'entropie, prise ici comme fonction de u et de T. La loi de Wien implique :

$$ds = -\frac{du}{\beta\nu} \ln \frac{u}{\alpha\nu^3} \tag{3.5}$$

soit, en intégrant :

$$s = -\frac{u}{\beta\nu} \left(\ln \frac{u}{\alpha\nu^3} - 1 \right) \tag{3.6}$$

en supposant $s(0) = 0$. On en déduit la variation d'entropie du rayonnement thermique lors d'une variation isotherme de volume de V_0 à V :

$$S - S_0 = \frac{E}{\beta\nu} \ln \frac{V}{V_0} \tag{3.7}$$

C'est la même loi de variation que pour l'entropie d'un *gaz parfait de N particules* :

$$S - S_0 = k_B N \ln \frac{V}{V_0} \tag{3.8}$$

Einstein est donc conduit par ce raisonnement à assimiler le rayonnement thermique, dans la zone de paramètres où il obéit à la loi de Wien, à un gaz parfait de N particules avec

$$N = \frac{E}{k_B \beta\nu} = \frac{E}{h\nu} \tag{3.9}$$

L'énergie totale du rayonnement thermique dans la bande de fréquence $d\nu$ est donc assimilable à celle de N particules indépendantes ayant chacune une énergie $h\nu$.

2. Décomposition en modes du champ électromagnétique classique

Pour quantifier de manière simple le champ électromagnétique, nous avons tout d'abord besoin de le décrire sous une forme adaptée, qui consiste à le décomposer en modes. C'est ce que nous faisons dans cette section.

2.1 Équations de Maxwell pour les champs complexes

Comme les équations de Maxwell sont linéaires par rapport aux champs, on peut les écrire pour les *champs complexes*, ce qui est souvent commode dans les calculs d'électromagnétisme . Pour définir ceux-ci de manière rigoureuse, introduisons la décomposition de Fourier fréquentielle du champ $\mathbf{E}$, par exemple :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r},\omega) e^{-i\omega t} \frac{d\omega}{2\pi} \tag{3.10}$$

Le champ complexe, encore appelé *signal analytique*, est formé des *seules composantes spectrales de fréquence positive*[1] *du champ réel*. Il est donc défini par :

$$\underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) = \int_{0}^{\infty} \tilde{\mathbf{E}}(\mathbf{r},\omega) e^{-i\omega t} \frac{d\omega}{2\pi} \tag{3.11}$$

Il en résulte qu'on peut écrire :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = \underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) + \underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t)^* \quad \mathbf{B}(\mathbf{r},t) = \underline{\mathbf{B}}(\mathbf{r},t) + \underline{\mathbf{B}}(\mathbf{r},t)^* \tag{3.12}$$

Les champs complexes dans le vide, appelés aussi champs de rayonnement, obéissent aux équations de Maxwell en l'absence de charges et de courants

2.2 Décomposition en ondes planes progressives

Le système auquel nous nous intéressons est supposé de taille finie. Nous l'englobons alors dans un volume V de dimensions finies, mais largement supérieures au volume occupé par le système. Nous supposerons pour simplifier que ce volume est cubique de côté L. On définit alors les composantes

1. Pour suivre une convention commode en Mécanique Quantique où les facteurs $e^{-iEt/\hbar}$ sont fréquents, nous appellerons évolution de fréquence positive les facteurs temporels du type $e^{-i\omega t}$, correspondant donc à une énergie positive. Mais on trouve aussi dans la littérature la convention opposée

de Fourier spatiales du champ complexe $\underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t)$ par la relation :

$$\mathcal{E}_n(t) = \frac{1}{L^3}\int_{(V)} d^3r\underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t)e^{-i\mathbf{k_n}\cdot\mathbf{r}}. \tag{3.13}$$

Ces composantes de Fourier permettent à leur tour de calculer le champ en tout point du volume V, grâce à la formule :

$$\underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) = \sum_n \mathcal{E}_n(t)e^{i\mathbf{k_n}\cdot\mathbf{r}}. \tag{3.14}$$

L'intégrale est limitée au volume V et la notation $\sum_n$ est une notation abrégée pour $\sum_{n_x,n_y,n_z}$, les nombres entiers n_x, n_y, n_z (positifs, négatifs ou nuls) permettant de définir les trois composantes du vecteur $\mathbf{k_n}$:

$$(\mathbf{k_n})_x = n_x\frac{2\pi}{L} \quad ; \quad (\mathbf{k_n})_y = n_y\frac{2\pi}{L} \quad ; \quad (\mathbf{k_n})_z = n_z\frac{2\pi}{L}. \tag{3.15}$$

Les extrémités du vecteur $\mathbf{k_n}$ forment donc un réseau cubique de pas $2\pi/L$, qui est d'autant plus serré que le volume V est grand. .

La nullité des divergences dans les équations de Maxwell implique les relations suivantes pour les composantes de Fourier de champs électriques et magnétiques :

$$\mathbf{k_n}\cdot\mathcal{E}_n = 0 \quad \mathbf{k_n}\cdot\mathcal{B}_n = 0 \tag{3.16}$$

Elles sont donc perpendiculaires au vecteur d'onde en tout point de l'espace réciproque [2]. Les relations 3.16 montrent que pour une direction $\mathbf{k_n}$ donnée, les vecteurs $\mathcal{E}_n$ et $\mathcal{B}_n$ appartiennent à un espace de dimension 2 orthogonal à $\mathbf{k_n}$. On peut définir dans ce plan (et d'une infinité de manières différentes) deux vecteurs unitaires $\varepsilon_{n,1}$ et $\varepsilon_{n,2}$ orthogonaux entre eux et écrire, par exemple pour le champ électrique :

$$\mathcal{E}_\mathbf{n} = \mathcal{E}_{n,1}\varepsilon_{n,1} + \mathcal{E}_{n,2}\varepsilon_{n,2} \tag{3.17}$$

L'équation 3.17 nous montre que le champ électrique libre (ainsi que le champ magnétique libre) peut être décomposé en *composantes scalaires* $\mathcal{E}_{n,s}$ sur la base des *modes d'ondes planes progressives polarisées* de vecteur d'onde $\mathbf{k_n} = (\mathbf{k_{n_x}}, \mathbf{k_{n_y}}, \mathbf{k_{n_z}})$ et de polarisation $\varepsilon_{n,s}$. Chaque composante est repérée

2. On appelle *champs transverses* des champs dont les composantes de Fourier obéissent à des relations de ce type, et qui sont donc de divergence nulle.

par un ensemble de quatre indices n_x, n_y, n_z et s. Les trois premiers peuvent prendre toute valeur entière, tandis que s vaut 1 ou 2. Nous désignerons par un indice "collectif" unique ℓ l'ensemble de ces quatre nombres entiers, et nous pourrons finalement écrire :

$$\underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) = \sum_{\ell} \mathcal{E}_\ell(t)\varepsilon_\ell e^{i\mathbf{k}_\ell\cdot\mathbf{r}} \tag{3.18}$$

Si on fait tendre la dimension L de la boite vers l'infini, les vecteurs $\overrightarrow{k_\ell}$ figurant dans la décomposition en série de Fourier appartiennent à un réseau de plus en plus serré. Il est souvent utile de passer à la limite continue :

$$\sum_{\ell} \approx \left(\frac{L}{2\pi}\right)^3 \sum_{m=1,2} \iiint_V d^3k \tag{3.19}$$

ce qui revient à dire que la densité dans l'espace des $\overrightarrow{k}$ vaut $\left(\frac{2\pi}{L}\right)^3$.

Remarquons finalement que la notion de décomposition des champs transverses en deux polarisations orthogonales peut être généralisée au cas des polarisations circulaires droite et gauche en introduisant des vecteurs unitaires complexes dont l'orthogonalité s'exprime par la nullité du produit hermitien.

2.3 Décomposition des champs sur une base quelconque de modes

La décomposition 3.18 n'est pas la seule possible pour le champ électrique complexe. On peut en effet décomposer à l'intérieur du volume V tout champ vectoriel complexe sur un ensemble de fonctions vectorielles $(\mathbf{u}_\ell(\mathbf{r}))$ satisfaisant aux deux propriétés d'orthogonalité et de fermeture :

$$\int_{(V)} d^3r\ \mathbf{u}_\ell(\mathbf{r})^* \cdot \mathbf{u}_{\ell'}(\mathbf{r})) = \delta_{\ell,\ell'} \tag{3.20}$$

$$\sum_{\ell} \mathbf{u}_\ell(\mathbf{r})^* \cdot \mathbf{u}_\ell(\mathbf{r}')) = \delta(\mathbf{r}-\mathbf{r}') \tag{3.21}$$

où le premier δ est un symbole de Kronecker, et le second une distribution de Dirac à trois dimensions. Ces deux relations assurent que n'importe quel champ complexe a une décomposition du type :

$$\underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) = \sum_{\mathbf{n}} \mathcal{E}_\ell(t)\mathbf{u}_\ell(\mathbf{r}), \tag{3.22}$$

avec

$$\mathcal{E}_\ell(t) = \int_{(V)} d^3r \; \mathbf{u}_\ell^*(\mathbf{r})\underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t); \tag{3.23}$$

Les équations de Maxwell imposent de plus que :

$$\nabla \cdot \mathbf{u}_\ell(\mathbf{r}) = 0 \tag{3.24}$$

La base de Fourier

$$\mathbf{u}_\ell(\mathbf{r}) = \frac{1}{L^{3/2}}\varepsilon_s \; e^{i\mathbf{k_n}\cdot\mathbf{r}} \tag{3.25}$$

où $\mathbf{k_n}$ est donné par 3.15, satisfait à toutes ces conditions, mais il y a bien d'autres ensembles de fonctions, ou *bases de modes*, possibles, comme celles formées d'ondes stationnaires, ou de modes Gaussiens. Les considérations qui suivent peuvent, sauf exception, s'étendre à d'autres types de décomposition.

2.4 Évolution temporelle

Les équations de Maxwell impliquent que les composantes de Fourier des champs électriques et magnétiques obéissent aux équations suivantes :

$$\frac{d}{dt}\mathcal{B}_n = -i\mathbf{k_n} \times \mathcal{E}_n \quad \frac{d}{dt}\mathcal{E}_n = ic^2\mathbf{k_n} \times \mathcal{B}_n. \tag{3.26}$$

En combinant ces équations, en utilisant la formule du double produit vectoriel,et en les projetant sur un des vecteurs de polarisation $\varepsilon_\ell = \varepsilon_{n,s}$, on obtient :

$$\frac{d^2\mathcal{E}_\ell}{dt^2} = -c^2{\mathbf{k}_\ell}^2\mathcal{E}_\ell \quad \frac{d^2\mathcal{B}_\ell}{dt^2} = -c^2{\mathbf{k}_\ell}^2\mathcal{B}_\ell. \tag{3.27}$$

Posons :

$$\omega_\ell = c\,|\mathbf{k}_\ell| \tag{3.28}$$

La contrainte que $\mathcal{E}_\ell$ et $\mathcal{B}_\ell$ sont les composantes de *signaux analytiques*, et n'ont donc pas de composantes négatives dans leur spectre de Fourier temporel, implique qu'il y a une solution unique aux équations 3.29 :

$$\mathcal{E}_\ell(t) = \mathcal{E}_\ell(0)e^{-i\omega_\ell t} \quad \mathcal{B}_\ell(t) = \mathcal{B}_\ell(0)e^{-i\omega_\ell t}. \tag{3.29}$$

On en déduit l'expression générale des champs électriques et magnétiques complexes dans le vide :

$$\underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) = \sum_\ell \underline{\mathcal{E}}_\ell\varepsilon_\ell e^{i\mathbf{k}_\ell\cdot\mathbf{r}-\mathbf{i}\omega_\ell\mathbf{t}} \tag{3.30}$$

$$\underline{\mathbf{B}}(\mathbf{r},t) = \sum_\ell \underline{\mathcal{B}}_\ell\varepsilon_\ell e^{i\mathbf{k}_\ell\cdot\mathbf{r}-\mathbf{i}\omega_\ell\mathbf{t}} \tag{3.31}$$

où les quantités $\underline{\mathcal{E}}_\ell$ sont des nombres complexes arbitraires, et où $\underline{\mathcal{B}}_\ell$ est donné par, d'après 3.26 :

$$\underline{\mathcal{B}}_\ell = \frac{\mathbf{k}_\ell}{\omega_\ell} \times \underline{\mathcal{E}}_\ell. \tag{3.32}$$

La décomposition sur une base des modes à l'intérieur d'un volume V fini de l'espace nous a donc bien permis d'exprimer n'importe quel champ électromagnétique libre à partir d'un ensemble dénombrable de quantités complexes indépendantes. Néanmoins, les produits vectoriels qui figurent dans ces équations compliquent le problème. Pour simplifier les équations il est pratique d'utiliser les composantes $\mathcal{A}_\ell(t)$ du potentiel vecteur. On se place de plus en *jauge de Coulomb*, c'est-à-dire qu'on suppose :

$$\nabla \cdot \underline{\mathbf{A}} = 0. \tag{3.33}$$

L'intérêt principal de ce choix de jauge est que, lorsque des charges et des courants sont présents, le potentiel scalaire $U(\mathbf{r}, t)$ n'est autre que le *potentiel de Coulomb instantané* créé par les charges présentes dans le système. Dans le cas présent ces charges sont nulles, et l'on peut écrire :

$$\underline{U}(\mathbf{r}, t) = 0. \tag{3.34}$$

Si on décompose le potentiel vecteur complexe en ses composantes de Fourier $\mathcal{A}_n$, celles-ci sont liées aux composantes du champ magnétique par :

$$\mathcal{B}_n = i\mathbf{k_n} \times \mathcal{A}_n. \tag{3.35}$$

La condition de Coulomb (3.33) impose en outre que :

$$\mathbf{k_n} \cdot \mathcal{A}_n = 0. \tag{3.36}$$

En exprimant dans l'équation (3.26) le champ magnétique en fonction du potentiel vecteur, et en tenant compte de (3.34) et (3.36), on obtient les deux équations vectorielles couplées suivantes :

$$\frac{d}{dt}\mathcal{A}_n = -\mathcal{E}_n \tag{3.37}$$

$$\frac{d}{dt}\mathcal{E}_n = \omega_n^2 \mathcal{A}_n. \tag{3.38}$$

où ω_n est défini par l'équation 3.30. Ces équations ne comportent pas de produit vectoriel, contrairement au couple d'équations (3.26)

En jauge de Coulomb, tout comme les champs électriques et magnétiques libres, le potentiel vecteur est un *champ transverse*. On peut donc le décomposer, comme les champs, sur la base des ondes progressives polarisées :

$$\underline{\mathbf{A}}(\mathbf{r},t) = \sum_{\ell} \mathcal{A}_\ell(t)\varepsilon_\ell e^{i\mathbf{k}_\ell\cdot\mathbf{r}} \tag{3.39}$$

On peut alors projeter les équations 3.37 sur un vecteur polarisation ε_ℓ pour obtenir finalement les équations suivantes pour les composantes scalaires $\mathcal{A}_\ell$ et $\mathcal{E}_\ell$ du champ électrique et du potentiel vecteur complexe :

$$\frac{d}{dt}\mathcal{A}_\ell = -\mathcal{E}_\ell \tag{3.40}$$

$$\frac{d}{dt}\mathcal{E}_\ell = \omega_n^2\mathcal{A}_\ell. \tag{3.41}$$

On en déduit l'équation d'évolution des seules composantes $\mathcal{A}_\ell(t)$:

$$\frac{d^2\mathcal{A}_\ell}{dt^2} = -\omega_\ell^2\mathcal{A}_\ell \tag{3.42}$$

et sa solution, compte tenu du fait que ce sont les composantes d'un signal analytique ne comportant que des fréquences positives :

$$\mathcal{A}_\ell(t) = \underline{\mathcal{A}}_\ell e^{-i\omega_\ell t}. \tag{3.43}$$

où $\underline{\mathcal{A}}_\ell$ est un nombre complexe quelconque. $\mathcal{E}_\ell(t)$ se déduit de $\mathcal{A}_\ell(t)$ par la relation :

$$\mathcal{E}_\ell(t) = i\omega_\ell\mathcal{A}_\ell(t). \tag{3.44}$$

L'équation d'évolution de la composante $\mathcal{A}_\ell(t)$ est en définitive :

$$\frac{d}{dt}\mathcal{A}_\ell(t) = -i\omega_\ell\mathcal{A}_\ell(t). \tag{3.45}$$

Elle est du premier ordre en temps.

La décomposition du champ complexe en ondes planes progressives polarisées nous permet donc d'obtenir des équations scalaires d'évolution du premier ordre en t qui ne couplent pas les modes différents. Pour identifier ces équations avec de équations de Hamilton-Jacobi, il nous faut déterminer l'hamiltonien du système qui intervient aussi dans ces équations. C'est ce que nous allons faire dans la section suivante. On pourra alors identifier

les couples de variables dynamiques conjuguées indépendantes au sens de Hamilton, et quantifier simplement le champ électromagnétique libre.

Écrivons au préalable la forme générale des champs électriques et magnétiques en fonction des composantes du potentiel vecteur :

$$\underline{\mathbf{E}}(\mathbf{r},t) = -i\sum_{\ell}\omega_\ell \mathcal{A}_\ell(t)\varepsilon_\ell e^{i\mathbf{k}_\ell\cdot\mathbf{r}} \tag{3.46}$$

$$\underline{\mathbf{B}}(\mathbf{r},t) = i\sum_{\ell}\mathcal{A}_\ell(t)\mathbf{k}_\ell\times\varepsilon_\ell \mathbf{e}^{i\mathbf{k}_\ell\cdot\mathbf{r}} \tag{3.47}$$

où $\mathcal{A}_\ell(t) = \underline{\mathcal{A}}_\ell e^{-i\omega_\ell t}$. Rappelons enfin que les champs réels, ceux qui interviennent dans la force de Lorentz agissant sur des particules chargées, sont égaux à la somme de ces quantités et de leurs complexes conjugués.

3. Quantification du rayonnement libre

3.1 Énergie classique du champ de rayonnement

On sait que l'énergie H_R du champ électromagnétique est l'intégrale sur tout le volume V de la densité d'énergie. Elle s'écrit

$$H_R = \varepsilon_0\int_{(V)} d^3r(\mathbf{E}^2(\mathbf{r},t) + c^2\mathbf{B}^2(\mathbf{r},t)) \tag{3.48}$$

Si on exprime le carré des champs réels en fonction des champs complexes (expression 3.12), on obtiendra des termes en $\underline{\mathbf{E}}^2$, $\underline{\mathbf{E}}^{*2}$ et $|\underline{\mathbf{E}}|^2$. Commençons par la contribution des premiers à l'énergie. En utilisant la décomposition en ondes planes progressives on a

$$\int_{(V)} d^3r(\underline{\mathbf{E}}^2 + c^2\underline{\mathbf{B}}^2) = \sum_{n,n'}\int_{(V)} d^3r\left(\mathcal{E}_n\cdot\mathcal{E}_{n'} + c^2\mathcal{B}_n\cdot\mathcal{B}_{n'}\right)e^{i(\mathbf{k}_n+\mathbf{k}_{n'})\cdot\mathbf{r}} \tag{3.49}$$

Il est facile de voir que l'intégrale des termes tels que $\mathbf{k}_n + \mathbf{k}_{n'} \neq 0$ s'annule à cause des conditions aux limites périodiques 3.15. Il ne reste alors dans la somme que les termes non oscillants. Mais dans ce cas, à cause de la relation 3.32, et du fait que $\mathbf{k}_{n'} = -\mathbf{k}_n$on a

$$\mathcal{B}_n\cdot\mathcal{B}_{n'} = -\frac{1}{c^2}\mathcal{E}_n\cdot\mathcal{E}_{n'} \tag{3.50}$$

et l'intégrand dans 3.49 est nul. On en conclut que la contribution à l'énergie des termes en $\underline{\mathbf{E}}^2$ est nulle. Celle des termes en $\underline{\mathbf{E}}^{*2}$, conjuguée de la précédente, est aussi nulle. Il ne reste que les termes en $|\underline{\mathbf{E}}|^2$, qu'on peut récrire en utilisant la relation de Parseval-Plancherel 3.16 :

$$H_R = \varepsilon_0 \int_{(V)} d^3r(|\underline{\mathbf{E}}|^2 + c^2\,|\underline{\mathbf{B}}|^2) = \varepsilon_0 L^3 \sum_n (|\mathcal{E}_n|^2 + c^2\,|\mathcal{B}_n|^2) \tag{3.51}$$

En définitive, en tenant compte de l'existence des deux composantes scalaires de polarisation pour chaque vecteur d'onde $\mathbf{k_n}$, on peut mettre H_R sous la forme :

$$H_R = \varepsilon_0 L^3 \sum_\ell \left(|\mathcal{E}_\ell|^2 + \omega_\ell^2\,|\mathcal{A}_\ell|^2\right) \tag{3.52}$$

et finalement, à cause de (3.44) :

$$H_R = 2\varepsilon_0 L^3 \sum_\ell \omega_\ell^2\,|\mathcal{A}_\ell|^2 \tag{3.53}$$

L'énergie du rayonnement apparaît comme la somme des énergies associées à chaque mode, l'"excitation" de chaque mode étant proportionnelle à la quantité $|\mathcal{A}_\ell|^2$. Ce résultat est particulièrement important dans la mesure où les divers modes ont des dynamiques indépendantes, comme nous l'avons vu dans la section précédente. Nous allons maintenant voir que chacun de ces modes est formellement analogue à un oscillateur harmonique classique.

3.2 Analogie avec un oscillateur harmonique matériel à une dimension

L'Hamiltonien d'un oscillateur harmonique matériel à une dimension s'écrit :

$$H = \frac{p^2}{2m} + \frac{1}{2} m\omega_0^2 x^2 \tag{3.54}$$

et les équations de Hamilton-Jacobi correspondantes sont

$$\frac{dx}{dt} = \frac{p}{m} = \frac{\partial H}{\partial p} \tag{3.55}$$

$$\frac{dp}{dt} = -m\omega_0^2 x = -\frac{\partial H}{\partial x} \tag{3.56}$$

Ces équations montrent que le problème a été mis sous forme canonique, x et p étant un couple de variables canoniques conjuguées, et H étant l'hamiltonien du problème.

Il est commode d'introduire la *variable normale* α : (3.55)

$$\alpha = x + i\frac{p}{m\omega_0} \tag{3.57}$$

x est donc la partie réelle de α, et p est proportionnel à sa partie imaginaire. α obéit à l'équation d'évolution :

$$\frac{d\alpha}{dt} = -i\omega_0\alpha. \tag{3.58}$$

et évolue sous la forme d'une exponentielle complexe :

$$\alpha(t) = \alpha(0)e^{-i\omega_0 t.} \tag{3.59}$$

L'hamiltonien s'écrit aussi :

$$H = \frac{1}{2}m\omega_0^2|\alpha|^2 \tag{3.60}$$

Revenons au rayonnement libre dans le cas où un seul mode, de valeur donnée de ℓ, est excité. L'énergie du mode vaut (équation 3.44)

$$H_\ell = 2\varepsilon_0 L^3\omega_\ell^2\,|\mathcal{A}_\ell|^2 \tag{3.61}$$

Il s'agit d'un Hamiltonien proportionnel au carré du modèle de la variable dynamique complexe décrivant le système, proche de celui de l'oscillateur harmonique matériel écrit sous la forme (3.60).

Introduisons alors les parties réelle et imaginaire de $\mathcal{A}_\ell(t)$:

$$\mathcal{A}_\ell(t) = \mathcal{A}_{P\ell}(t) + i\mathcal{A}_{Q\ell}(t). \tag{3.62}$$

A partir de l'équation d'évolution 3.45 de la quantité complexe $\mathcal{A}_\ell$ on déduit celles de $\mathcal{A}_{P\ell}$ et $\mathcal{A}_{Q\ell}$:

$$\frac{d}{dt}\mathcal{A}_{P\ell} = \omega_\ell\mathcal{A}_{Q\ell} \tag{3.63}$$

$$\frac{d}{dt}\mathcal{A}_{Q\ell} = -\omega_\ell\mathcal{A}_{P\ell}. \tag{3.64}$$

L'Hamiltonien H_ℓ s'écrit quant à lui

$$H_\ell = 2\varepsilon_0 L^3\omega_\ell^2\left(\mathcal{A}_{P\ell}^2 + \mathcal{A}_{Q\ell}^2\right) \tag{3.65}$$

On obtient donc bien des équations d'évolution linéaires en $\mathcal{A}_{P\ell}$, $\mathcal{A}_{Q\ell}$ et un hamiltonien quadratique, caractéristiques de l'oscillateur harmonique.

Il est en outre facile de voir que les équation d'évolution (3.63) sont un couple d'équations de Hamilton-Jacobi utilisant l'Hamiltonien du système 3.65 à condition de prendre comme couple de variables canoniques conjuguées les quantités

$$x \leftrightarrow 2\sqrt{\varepsilon_0 L^3 \omega_\ell}\mathcal{A}_{P\ell} \quad p \leftrightarrow 2\sqrt{\varepsilon_0 L^3 \omega_\ell}\mathcal{A}_{Q\ell}. \tag{3.66}$$

Comme l'hamiltonien total du rayonnement est la somme des énergies H_ℓ relatives aux divers modes, le rayonnement est donc décrit par un ensemble de variables canoniques conjuguées indépendantes proportionnelles aux parties réelles et imaginaires des composantes du potentiel vecteur de chacun des modes.

3.3 Quantification du rayonnement

Ayant identifié les couples de variables canoniques conjuguées (relations 3.66), nous pouvons maintenant effectuer la quantification du rayonnement [3].

Dans le cas d'oscillateurs harmoniques matériels indépendants, de même masse m et de pulsations différentes ω_ℓ, les variables canoniques conjuguées sont la position et l'impulsion x_ℓ et p_ℓ de chacune des particules. La quantification d'un tel système consiste à remplacer les variables dynamiques conjuguées classiques dépendant du temps x_ℓ et p_ℓ par des opérateurs $\hat{x}_\ell$ et $\hat{p}_\ell$ indépendant du temps et obéissant aux règles de commutation canoniques :

$$[\hat{x}_\ell, \hat{p}_{\ell'}] = i\hbar\delta_{\ell\ell'} \tag{3.67}$$

Dans le cas du champ électromagnétique libre, on remplace les parties réelle et imaginaire du potentiel vecteur complexe dépendant du temps par des opérateurs hermitiens $\hat{A}_{P\ell}$ et $\hat{A}_{Q\ell}$ indépendant du temps qui obéissent aux règles de commutation canoniques suivantes

$$\left[2\sqrt{\varepsilon_0 L^3 \omega_\ell}\mathcal{A}_{P\ell}, 2\sqrt{\varepsilon_0 L^3 \omega_\ell}\mathcal{A}_{Q\ell'}\right] = i\hbar\delta_{\ell\ell'} \tag{3.68}$$

On en déduit les règles de commutation entre l'opérateur non hermitien $\hat{A}_\ell = \hat{A}_{P\ell} + i\hat{A}_{Q\ell}$, associé à la composante $\mathcal{A}_\ell$ du potentiel vecteur sur la base des

3. Indiquons que la méthode suivie n'est pas totalement rigoureuse, car nous n'avons pas introduit le Lagrangien de rayonnement, et nous nous sommes contentés de deviner quels sont les bons couples de variables canoniques conjuguées.

ondes planes polarisées progressives, et son hermitien conjugué :

$$\left[\hat{A}_\ell, \hat{A}^\dagger_{\ell'}\right] = \frac{\hbar}{2\varepsilon_0 L^3 \omega_\ell}\delta_{\ell\ell'} \tag{3.69}$$

A partir de la forme classique de l'hamiltonien 3.44 et des règles de quantification qui imposent d'associer l'opérateur symétrisé $(\hat{A}_\ell\hat{A}^\dagger_\ell + \hat{A}^\dagger_\ell\hat{A}_\ell)/2$ à la quantité classique $|\mathcal{A}_\ell|^2$, on obtient l'opérateur hamiltonien du rayonnement libre :

$$\hat{H}_R = 2\varepsilon_0 L^3 \sum_\ell \frac{\omega_\ell^2}{2}\left(\hat{A}_\ell\hat{A}^\dagger_\ell + \hat{A}^\dagger_\ell\hat{A}_\ell\right) \tag{3.70}$$

On pose alors :

$$\hat{A}_\ell = \sqrt{\frac{\hbar}{2\varepsilon_0 L^3 \omega_\ell}}\hat{a}_\ell \tag{3.71}$$

L'introduction de l'opérateur non hermitien $\hat{a}_\ell$ nous permet de simplifier l'expression du commutateur :

$$\left[\hat{a}_\ell, \hat{a}^\dagger_{\ell'}\right] = \delta_{\ell\ell'} \tag{3.72}$$

et de l'hamiltonien :

$$\hat{H}_R = \sum_\ell \frac{\hbar\omega_\ell}{2}\left(\hat{a}_\ell\hat{a}^\dagger_\ell + \hat{a}^\dagger_\ell\hat{a}_\ell\right) \tag{3.73}$$

On trouve bien, comme attendu, l'hamiltonien d'un ensemble d'oscillateurs harmoniques quantiques indépendants, pour lesquels l'analogue de la position et de l'impulsion sont les parties réelles et imaginaires de la composante $\mathcal{A}_\ell$ du potentiel vecteur complexe sur un mode du champ. L'opérateur $\hat{a}_\ell$, introduit comme opérateur associé, à une constante multiplicative près, à la composante complexe $\mathcal{A}_\ell$ est l'opérateur d'annihilation des quanta d'énergie de cet oscillateur.

Toutes les observables du rayonnement s'expriment en fonction des opérateurs $\hat{a}_\ell$ et $\hat{a}^\dagger_\ell$, qui s'appellent opérateurs de destruction et de création de photons dans le mode ℓ (cette dénomination sera justifiée au chapitre suivant). Par exemple les observables de champ s'obtiennent directement à partir des expressions classiques établies plus haut (équations 3.46). Les opérateurs associés aux champs complexes (ou "champs de fréquence positive"),

notés traditionnellement $\hat{\mathbf{A}}^{(+)}(\mathbf{r})$, $\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r})$ et $\hat{\mathbf{B}}^{(+)}(\mathbf{r})$, s'écrivent :

$$\hat{\mathbf{A}}^{(+)}(\mathbf{r}) = \sum_{\ell} \sqrt{\frac{\hbar}{2\varepsilon_0 L^3 \omega_\ell}} \hat{a}_\ell \varepsilon_\ell e^{i\mathbf{k}_\ell \cdot \mathbf{r}} \tag{3.74}$$

$$\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}) = -i \sum_{\ell} \sqrt{\frac{\hbar\omega_\ell}{2\varepsilon_0 L^3}} \hat{a}_\ell \varepsilon_\ell e^{i\mathbf{k}_\ell \cdot \mathbf{r}} \tag{3.75}$$

$$\hat{\mathbf{B}}^{(+)}(\mathbf{r}) = i \sum_{\ell} \sqrt{\frac{\hbar}{2\varepsilon_0 L^3 \omega_\ell}} \hat{a}_\ell \mathbf{k}_\ell \times \varepsilon_\ell \mathbf{e}^{i\mathbf{k}_\ell \cdot \mathbf{r}} \tag{3.76}$$

Notons que ces opérateurs ne sont pas hermitiens. L'opérateur hermitien associé au champ électrique réel est donné par :

$$\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}) = \hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}) + \hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r}) \tag{3.77}$$

$\hat{\mathbf{E}}^{(-)}(\mathbf{r})$ étant l'opérateur hermitien conjugué de $\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r})$, qui est donc une combinaison linéaires des opérateurs $\hat{a}_\ell^\dagger$. On a des relations analogues pour le champ magnétique et pour le potentiel vecteur.

3.4 États propres de $\widehat{H}$

On montre à partir de la relation de commutation $\left[\widehat{a}_l \widehat{a}_l^+\right] = 1$ que l'opérateur $\widehat{N}_l$ que nous avons introduit dans le paragraphe précédent a pour spectre l'ensemble des entiers N. C'est la raison pour laquelle on l'appelle *opérateur nombre*. Il existe donc des vecteurs d'états, notés $\mid n_l\rangle$, tels que :

$$\widehat{N}_l \left|n_l\right\rangle = n_l \left|n_l\right\rangle \tag{3.78}$$

pour lesquels on a aussi les relations suivantes, démontrées dans le cadre de l'oscillateur harmonique matériel mais valides aussi pour un mode du champ car elles se déduisent uniquement des relations de commutation :

$$\widehat{a}_l \left|n_l\right\rangle = \sqrt{n_l} \left|n_l - 1\right\rangle \quad \widehat{a}_l^+ \left|n_l\right\rangle = \sqrt{n_l + 1} \left|n_l + 1\right\rangle \tag{3.79}$$

Comme $\left[\widehat{N}_l, \widehat{N}_{l'}\right] = 0$, les états propres de l'hamiltonien $\widehat{H}$ sont des produits tensoriels d'états $\left|n_l\right\rangle$, de la forme :

$$\left|n_1\right\rangle \otimes \left|n_2\right\rangle \otimes ... \otimes \left|n_l\right\rangle \otimes ...$$

que nous noterons pour simplifier :

$$|n_1, n_2, ..., n_l, ...\rangle$$

On a donc :

$$\widehat{H}\left|n_1, n_2, ..., n_{l),...}\right\rangle = \left[\sum_l \left(n_l + \frac{1}{2}\right)\hbar\omega_l\right]|n_1, n_2, ..., n_l, ...\rangle \tag{3.80}$$

L'état fondamental du système est l'état $|n_1 = 0, n_2 = 0, ..., n_l = 0, ...\rangle$, appelé le vide, et noté $|0\rangle$ pour simplifier.

Les états propres de l'hamiltonien forment de plus une base de l'espace des états du champ. Le vecteur d'état le plus général pour le champ électromagnétique s'écrit donc :

$$|\Psi\rangle = \sum_{n_1=0}^{\infty}\sum_{n_2=0}^{\infty}...\sum_{n_l=0}^{\infty}... \quad C_{n_1,n_2,...n_l,...}\,|n_1, n_2, ..., n_l, ...\rangle \tag{3.81}$$

La dimension de l'espace vectoriel dans lequel évolue cet état est $(cardN)^{cardN}$, où $cardN$ est l'infini dénombrable, alors qu'un champ classique, défini par la donnée des quantités $\{\alpha_l\}_{l=\in N}$, appartient à un espace vectoriel de dimension $cardN$. On a du mal à imaginer la prodigieuse variété de ces états. Au début du vingt-unième siècle, on n'a encore étudié théoriquement qu'une toute petite fraction de cette espace, et on en a produit expérimentalement encore moins.

4. Changement de base de modes

4.1 Transformation unitaire pour les opérateurs de création et d'annihilation

Nous venons de quantifier le champ sur la base des modes d'ondes progressives $\{\mathbf{u}_\ell\}$, qui s'écrivent :

$$\mathbf{u}_\ell(\mathbf{r}) = \varepsilon_\ell e^{i\mathbf{k}_\ell\cdot\mathbf{r}} \tag{3.82}$$

et qui nous ont permis d'introduire des opérateurs de création et d'annihilation $\hat{a}_\ell$ et $\hat{a}_\ell^\dagger$, et de définir des états quantiques "nombre" $|n_\ell\rangle$, que nous

écrirons ici $|\ell : n_\ell\rangle$, et qui sont états propres de $\hat{N}_\ell = \hat{a}_\ell^\dagger \hat{a}_\ell$. Ils décrivent n_ℓ photons in mode ℓ.

Comme on l'a vu plus haut, ce n'est pas la seule base de modes possible. Nous allons voir dans cette section comment décrire les propriétés quantiques du champ sur n'importe quelle base.

On introduit une *transformation unitaire* agissant sur les opérateurs $\hat{a}_\ell^\dagger$, qui nous permettent d'introduire de nouveaux opérateurs $\{\hat{b}_m^\dagger\}$ by :

$$\hat{b}_m^\dagger = \sum_\ell U_m^\ell \hat{a}_\ell^\dagger \tag{3.83}$$

où U_m^ℓ est un élément de la matrice unitaire $\mathbf{U}$ ($\mathbf{U}^{-1} = \mathbf{U}^\dagger$). L'hermitien conjugué de cette quantité vaut :

$$\hat{b}_m = \sum_\ell \left(U_m^\ell\right)^* \hat{a}_\ell = \sum_\ell (U^{-1})_\ell^m \hat{a}_\ell, \tag{3.84}$$

D'où :

$$[\hat{b}_m, \hat{b}_{m'}^\dagger] = \sum_{\ell,\ell'} (U^{-1})_\ell^m U_{m'}^{\ell'} [\hat{a}_\ell, \hat{a}_{\ell'}^\dagger] = \sum_\ell (U^{-1})_\ell^m U_{m'}^\ell = \delta_{m,m'} \tag{3.85}$$

On voit que les opérateurs $\{\hat{b}_m\}$ forment, tout comme les opérateurs $\{\hat{a}_\ell\}$, un ensemble d'opérateurs d'annihilation d'oscillateurs harmoniques indépendants. On peut donc définir de nouveaux états quantiques "nombre" $|m : n_m\rangle$ qui sont les états propres des nouveaux opérateurs nombres $\hat{N}_m = \hat{b}_m^\dagger \hat{b}_m$. Ces états décrivent n_m photons dans de nouveaux modes définis à partir des opérateurs $\hat{b}_m$ et $\hat{b}_m^\dagger$. Ils forment une nouvelle base de l'espace de Hilbert des états du champ électromagnétique, sur laquelle tout état $|\Psi\rangle$ du champ peut être décomposé.

Le champ électrique complexe $\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r})$, qui s'écrit sur la base des ondes planes progressives comme :

$$\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}) = i \sum_\ell \mathcal{E}_\ell \hat{a}_\ell \mathbf{u}_\ell(\mathbf{r}) \tag{3.86}$$

peut aussi s'écrire, en utilisant :

$$\hat{a}_\ell = \sum_m U_m^\ell \hat{b}_m \tag{3.87}$$

sur la nouvelle base des opérateurs d'annihilation :

$$\hat{\mathbf{E}}^{(+)}(\mathbf{r}) = i \sum_m \hat{b}_m \mathbf{v}_m(\mathbf{r}) \tag{3.88}$$

avec

$$\mathbf{v}_m(\mathbf{r}) = \sum_\ell \mathcal{E}_\ell U_m^\ell \mathbf{u}_\ell(\mathbf{r}) \tag{3.89}$$

Les fonctions $\mathbf{v}_m(\mathbf{r})$ nous permettent aussi de décomposer le champ complexe classique $\mathbf{E}^{(+)}(\mathbf{r}, t)$ sur les modes $\mathbf{v}_m(\mathbf{r})$:

$$\mathbf{E}^{(+)}(\mathbf{r}, t) = \sum_m \beta_m(t) \mathbf{v}_m(\mathbf{r}) \tag{3.90}$$

Il est facile de voir que les fonctions $\mathbf{v}_m(\mathbf{r})$ sont orthogonales entre elles (mais, pas normalisées à 1).

La fonction $\mathbf{v}_m(\mathbf{r})$ décrit donc le *mode spatial* attaché à l'opérateur d'annihilation $\hat{b}_m$. Elle donne la variation spatiale du champ électrique moyen quand le système est dans un état $|m : n_m\rangle$, et plus généralement dans un *état monomode*, combinaison linéaire quelconque des états $|m : n_m\rangle$ pour une valeur fixe de m.

4.2 Invariance du vide

L'état vide, état fondamental du champ, a été défini dans la section précédente sur la base des ondes planes progressives. Il a la propriété suivante :

$$\forall \ell \quad \hat{a}_\ell |0\rangle = 0 \tag{3.91}$$

ce qui implique :

$$\forall m \quad \hat{b}_m^\dagger \hat{b}_m |0\rangle = 0 \tag{3.92}$$

$|0\rangle$ est donc aussi l'état $|m = 1 : 0\rangle \otimes ..|m : 0\rangle \otimes ..$ correspondant à zero photons dans tous les modes de la nouvelle base. Il en résulte que *le vide est invariant par rapport à tout changement de base de modes.*

Grâce à cette propriété, on peut trouver l'expression de n'importe quel état nombre $|m : n_m\rangle$ comportant n_m photons dans le mode $\mathbf{v}_m(\mathbf{r})$:

$$|m : n_m\rangle = \frac{1}{\sqrt{n_m!}} (\hat{b}_m^\dagger)^{n_m} |0\rangle = \frac{1}{\sqrt{n_m!}} \left(\sum_\ell U_m^\ell \hat{a}_\ell^\dagger \right)^{n_m} |0\rangle \tag{3.93}$$

Cette expression est particulièrement simple dans le cas d'un état à un photon $|m:1\rangle$:

$$|m:1\rangle = \sum_{\ell} U_m^{\ell} \hat{a}_{\ell}^{\dagger}|0\rangle = \sum_{\ell} U_m^{\ell}|\ell:1\rangle \tag{3.94}$$

4.3 Nombre total de photons

On définit l'opérateur $\hat{N}_{tot}$, qui donne le nombre total de photons dans tous les modes de la base $\{\mathbf{u}_\ell\}$:

$$\hat{N}_{tot} = \sum_{\ell} \hat{a}_{\ell}^{\dagger}\hat{a}_{\ell} \tag{3.95}$$

Il est facile de voir que l'on a, à cause du caractère unitaire de la transformation de passage d'une base à l'autre :

$$\sum_{m} \hat{b}_m^{\dagger}\hat{b}_m = \sum_{\ell} \hat{a}_{\ell}^{\dagger}\hat{a}_{\ell} \tag{3.96}$$

le nombre total de photons est donc le même dans n'importe quelle base de modes.

Considérons par exemple l'état quantique :

$$|\Psi_1\rangle = \sum_{\ell} c_\ell|\ell:1\rangle \tag{3.97}$$

où les c_ℓ sont des nombres complexes arbitraires. Nous verrons qu'un tel état est produit par exemple par l'émission spontanée d'un atome unique. On peut l'appeler état à un photon, car il est état propre de $\hat{N}_{tot}$ avec la valeur propre 1. A cause de l'invariance de $\hat{N}_{tot}$ que nous venons de démontrer, cette propriété est "intrinsèque", c'est-à-dire indépendante du choix de la base de modes. Considérons alors la fonction :

$$\mathbf{v}_1(\mathbf{r}) = \sum_{\ell} c_\ell \mathbf{u}_\ell(\mathbf{r}) \tag{3.98}$$

Elle forme le premier élément d'un ensemble de fonctions orthogonales $\{\mathbf{v}_m(\mathbf{r})\}$ sur lesquelles tout champ peut être décomposé, Des états nombres peuvent être définis sur ce nouvel ensemble de modes, et on peut montrer facilement que :

$$|\Psi_1\rangle = \sum_{\ell} c_\ell|\ell:1\rangle = |m:1\rangle \tag{3.99}$$

Un état à un photon, même lorsqu'il semble "très multimode" car s'exprimant à l'aide d'un très grand nombre de modes sur une base donnée, est en fait "monomode", si on prend une base adaptée. Notons que cette propriété n'est pas générale : il existe des états "intrinsèquement" multimodes pour lesquels il n'existe aucune base de modes sur laquelle ils sont monomodes. La fonction spatiale $\mathbf{v}_1(\mathbf{r})$, proprement normalisée apparaît en quelque sorte comme la "fonction d'onde" du photon unique parce qu'elle donne sa distribution spatiale de la probabilité de le détecter.

4.4 Un exemple simple : les modes d'onde stationnaire

On étudie ici à titre d'exemple un cas très simple : celui d'un champ se propageant dans la direction Oz et de polarisation parallèle à $0x$. En projetant le champ sur l'axe Ox, on peut s'affranchir du caractère vectoriel du champ électromagnétique. Ce champ peut être décomposé sur la base des ondes progressives :

$$u_\ell(\mathbf{r}) = e^{ik_\ell z} \tag{3.100}$$

avec $k_\ell = n_\ell 2\pi/L$. n_ℓ étant un nombre entier positif ou négatif, ces ondes se propagent soit dans la direction des z positifs, soit dans la direction des z négatifs. Les états nombre $|\ell : n_\ell\rangle$ décrivent donc n_ℓ photons ayant une énergie $\hbar\omega_\ell$ et une quantité de mouvement $\hbar k_\ell$ dans la direction Oz.

m étant un entier seulement positif, on peut définir de nouveaux opérateurs de création $\hat{b}_{m+}$ et $\hat{b}_{m-}$ par :

$$\begin{aligned} \hat{b}^\dagger_{m+} &= \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{a}^\dagger_{\ell=m} + \hat{a}^\dagger_{\ell=-m}) \\ \hat{b}^\dagger_{m-} &= \frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{a}^\dagger_{\ell=m} - \hat{a}^\dagger_{\ell=-m}) \end{aligned} \tag{3.101}$$

Ces deux relations définissent une transformation unitaire de l'ensemble $\hat{a}^\dagger_{\ell=m}, \hat{a}^\dagger_{\ell=-m}$ vers l'ensemble $\hat{b}^\dagger_{m+}, \hat{b}^\dagger_{m-}$. Les opérateurs $\hat{b}^\dagger_{m\pm}$ sont donc des opérateurs de création de photons dans les modes $v_{m\pm}(\mathbf{r})$ définis par :

$$\begin{aligned} v_{m+}(\mathbf{r}) &= \frac{\mathcal{E}_m}{\sqrt{2}}(e^{ik_m z} + e^{-ik_m z}) = \sqrt{2}\mathcal{E}_m \cos k_m z \\ v_{m-}(\mathbf{r}) &= \frac{\mathcal{E}_m}{\sqrt{2}}(e^{ik_m z} - e^{-ik_m z}) = i\sqrt{2}\mathcal{E}_m \sin k_m z \end{aligned} \tag{3.102}$$

Ce sont donc des *modes d'onde stationnaire*, et les états nombre $|m\pm : n\rangle$ décrivent n photons dans les ondes stationnaires $v_{m\pm}(\mathbf{r})$.

5. Impulsion et moment cinétique du rayonnement

5.1 Impulsion

L'impulsion $\mathbf{P}_R$ du champ de rayonnement est proportionnelle à l'intégrale sur le volume V du vecteur de Poynting [4] :

$$\mathbf{P}_R = \varepsilon_0 \int_{(V)} d^3r \mathbf{E}(\mathbf{r},t) \times \mathbf{B}(\mathbf{r},t) \tag{3.103}$$

où $\mathbf{E}(\mathbf{r},t)$ et $\mathbf{B}(\mathbf{r},t)$ sont les champs réels. C'est une quantité conservée au cours de l'évolution libre du champ.

Si on exprime les champs réels en fonction des champs complexes, on obtiendra des termes en $\underline{\mathbf{E}} \times \underline{\mathbf{B}}$, $\underline{\mathbf{E}}^* \times \underline{\mathbf{B}}^*$, $\underline{\mathbf{E}}^* \times \underline{\mathbf{B}}$ et $\underline{\mathbf{E}} \times \underline{\mathbf{B}}^*$. Commençons par la contribution du premier à l'impulsion. En utilisant la décomposition en ondes planes progressives on a

$$\int_{(V)} d^3r \underline{\mathbf{E}} \times \underline{\mathbf{B}} = \sum_{n,n'} \int_{(V)} d^3r \mathcal{E}_n \times \mathcal{B}_{n'} e^{i(\mathbf{k}_n + \mathbf{k}_{n'})\cdot\mathbf{r}} \tag{3.104}$$

Comme dans le calcul de l'énergie, l'intégrale des termes tels que $\mathbf{k}_n + \mathbf{k}_{n'} \neq 0$ s'annule à cause des conditions aux limites périodiques 3.15. Il ne reste alors dans la somme que les termes tels que $\mathbf{k}_{n'} = -\mathbf{k}_n$. Mais dans ce cas, en regroupant les couples (n,n') et (n',n) on a

$$\int_{(V)} d^3r \underline{\mathbf{E}} \times \underline{\mathbf{B}} = iL^3 \sum_{n>n'} \left(\mathcal{E}_n \times (\mathbf{k_{n'}} \times \mathcal{A}_{n'}) + \mathcal{E}_{n'} \times (\mathbf{k_n} \times \mathcal{A}_n)\right) \tag{3.105}$$

La décomposition des doubles produits vectoriels permet de montrer que ce terme s'annule, à cause de la transversalité des champs et de la relation $\mathbf{k}_{n'} = -\mathbf{k}_n$. Il en est de même du terme avec les deux complexes conjugués. Les deux autres termes s'expriment aisément dans l'espace réciproque à l'aide de la relation de Parseval-Plancherel et de la formule du double produit vectoriel. On a :

$$\mathbf{P}_R = i\varepsilon_0 L^3 \sum_n \left(\mathcal{E}_n^* \cdot \mathcal{A}_n - \mathcal{E}_n \cdot \mathcal{A}_n^*\right) \mathbf{k_n} \tag{3.106}$$

4. Voir E. Jackson, Classical Electrodynamics, Wiley (New York 1975), Section (6.9), ou bien R. Feynman, Lectures in Physics, Tome II.2.

On peut décomposer les produits scalaires sur la base des vecteurs de polarisation et obtenir une somme sur les modes d'ondes planes progressives polarisées, indexés par l'indice collectif ℓ :

$$\mathbf{P}_R = i\varepsilon_0 L^3 \sum_\ell \left(\mathcal{E}_\ell^* \mathcal{A}_\ell - \mathcal{E}_\ell \mathcal{A}_\ell^*\right) \mathbf{k}_\ell \tag{3.107}$$

En utilisant la relation 3.44 liant $\mathcal{E}_\ell$ et $\mathcal{A}_\ell$, on obtient finalement :

$$\mathbf{P}_R = 2\varepsilon_0 L^3 \sum_\ell \omega_\ell \left|\mathcal{A}_\ell\right|^2 \mathbf{k}_\ell \tag{3.108}$$

L'impulsion totale du rayonnement apparaît comme la somme d'impulsions associées à chaque mode ℓ. L'impulsion d'un mode est dirigée selon le vecteur d'onde $\mathbf{k}_\ell$ et décrit donc un effet de pression de radiation. Elle est proportionnelle à $|\mathcal{A}_\ell|^2$, qui caractérise donc, comme pour l'énergie, "l'excitation" du mode.

5.2 Moment cinétique

Le moment cinétique du rayonnement $\mathbf{J}_R$ est une autre constante du mouvement pour le champ libre. Il est proportionnel à l'intégrale sur le volume V du moment du vecteur de Poynting calculé par rapport à l'origine des coordonnées [5] :

$$\mathbf{J}_R = \varepsilon_0 \int_{(V)} d^3r \; \mathbf{r} \times (\mathbf{E}(\mathbf{r},t) \times \mathbf{B}(\mathbf{r},t)) \tag{3.109}$$

En utilisant la formule du double produit vectoriel et une intégration par parties tenant compte de l'hypothèse que les champs sont nuls à la surface du volume V introduit pour la décomposition en modes, on constate que $\mathbf{J}_R$ se met sous la forme d'une somme de deux termes :

$$\mathbf{J}_R = \mathbf{L}_R + \mathbf{S}_R \tag{3.110}$$

avec

$$\begin{aligned} \mathbf{L}_R &= \varepsilon_0 \sum_{j=(x,y,z)} \int d^3r E_j(\mathbf{r},t)(\mathbf{r} \times \nabla) A_j(\mathbf{r},t) \qquad (3.111) \\ \mathbf{S}_R &= \varepsilon_0 \int d^3r \mathbf{E}(\mathbf{r},t) \times \mathbf{A}\mathbf{r},t) \end{aligned}$$

5. E. Jackson, Classical electrodynamics, Wiley (New York 1975), CDG.

$\mathbf{L}_R$, qui dépend du point origine, est qualifié de "moment cinétique orbital", alors que $\mathbf{S}_R$, qui n'en dépend pas, est qualifié de "moment cinétique intrinsèque", ou "moment cinétique de spin".

On peut se convaincre facilement que cette séparation est invariante de jauge. Les qualificatifs "intrinsèque", "de spin", "orbitaux" ont été donnés par analogie avec le cas de la particule matérielle. Cette analogie ne doit pas être prise trop au pied de la lettre. Par exemple, à l'approximation paraxiale $\mathbf{L}_R$, de la même manière que $\mathbf{S}_R$ est inchangé lorsqu'on change le point origine des coordonnées. Il a donc aussi un caractère plus ou moins "intrinsèque".

a. Moment cinétique intrinsèque

Un calcul très analogue à celui mené pour le moment cinétique montre que $\mathbf{S}_R$ peut se décomposer sur la base des ondes planes progressives :

$$\mathbf{S}_R = i\varepsilon_0 L^3 \sum_{\mathbf{n}} \omega_{\mathbf{n}} \left(\mathcal{A}_{\mathbf{n}} \times \mathcal{A}_{\mathbf{n}}^* - \mathcal{A}_{\mathbf{n}}^* \times \mathcal{A}_{\mathbf{n}} \right). \tag{3.112}$$

Le vecteur transverse $\mathcal{A}_{\mathbf{n}}$ se décompose sur la base des deux vecteurs polarisations $\varepsilon_{n,s}$ $(s = 1, 2)$. Supposons tout d'abord que ces vecteurs sont réels, et correspondent donc à des polarisations rectilignes. On obtient alors

$$\mathbf{S}_R = i\varepsilon_0 L^3 \sum_{\mathbf{n}} \omega_{\mathbf{n}} \left(\mathcal{A}_{n,1}^* \mathcal{A}_{n,2} - \mathcal{A}_{n,1} \mathcal{A}_{n,2}^* \right) \varepsilon_{\mathbf{k}}. \tag{3.113}$$

où $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ est le vecteur unitaire dans la direction du vecteur d'onde $\mathbf{k}$. On obtient donc une expression comportant des termes croisés entre deux modes de polarisation différents : contrairement à l'énergie et à l'impulsion, le moment cinétique intrinsèque n'apparaît pas comme une somme de moments attachés à chacun des modes de polarisation rectiligne. Le moment cinétique intrinsèque est en particulier nul pour une onde polarisée rectilignement.

Considérons maintenant la décomposition de $\mathcal{A}_{\mathbf{n}}$ sur la base des vecteurs complexes :

$$\vec{\varepsilon}_{n,\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\vec{\varepsilon}_{n,1} \pm \vec{\varepsilon}_{n,2} \right), \tag{3.114}$$

qui correspondent à des polarisations circulaires droite ou gauche. On trouve alors

$$\mathbf{S}_R = 2\varepsilon_0 L^3 \sum_{\mathbf{n}} \omega_{\mathbf{n}} \left(\mathcal{A}_{n,+}^* \mathcal{A}_{n,+} - \mathcal{A}_{n,-}^* \mathcal{A}_{n,-} \right) \varepsilon_{\mathbf{k}}. \tag{3.115}$$

On a maintenant une expression "diagonalisée", qui permet d'attribuer un moment cinétique intrinsèque à chaque onde plane progressive polarisée circulairement prise isolément. Considérons par exemple une onde monochromatique de vecteur d'onde donné polarisée circulairement le long de $\vec{\varepsilon}_{n,+}$. On voit en outre que son moment cinétique intrinsèque vaut $H_{\mathbf{n}}/\omega_{\mathbf{n}}$. Une onde de polarisation circulaire intense transporte donc une quantité non négligeable de moment cinétique autour de sa direction de propagation, qui peut s'échanger avec celui de la matière lorsque la lumière change son état de polarisation en se propageant à travers une lame biréfringente. Cet effet a été mis en évidence expérimentalement par R. Beth, voir Phys. Rev **48** 471 (1935).

b. Moment cinétique orbital

Un bref calcul montre que le moment cinétique orbital est nul pour toute onde plane progressive, quelle que soit sa polarisation. Cette deuxième partie du moment angulaire est donc plus délicate à interpréter, et elle fait l'objet à l'heure actuelle de recherches actives.

Elle a en particulier une interprétation non ambiguë dans le contexte de *l'approximation paraxiale*, où l'on ne considère que des ondes se propageant au voisinage d'un axe optique (la direction Oz par exemple avec de faibles angles par rapport à cet axe. C'est le cas lorsque le champ varie dans le plan xOy sur des distances caractéristiques qui sont beaucoup plus grandes que la longueur d'onde. La diffraction joue alors un faible rôle, l'onde est "quasi-plane", et on peut écrire le potentiel vecteur complexe par exemple sous la forme :

$$\underline{\mathbf{A}}(\mathbf{r},t) = \varepsilon U(x,y,z)e^{i(kz-\omega t)} \tag{3.116}$$

où ε est le vecteur unitaire de polarisation et $U(x,y,z)$ une "enveloppe lentement variable", variant sur des distances grandes par rapport à la longueur d'onde. On sait que les modes Gaussiens forment une base de l'espace de telles fonctions. Supposons maintenant que $U(x,y,z)$ est de la forme[6] :

$$U(x,y,z) = u(r,z)e^{im\phi} \tag{3.117}$$

où (r,ϕ) sont les coordonnées polaires du plan transverse xOy. m est nécessairement un nombre entier pour que $U(x,y,z)$ prenne la même valeur pour

6. L. Allen, M.Beijersbergen, R.Spreeuw, J.Woerdman, Phys. Rev. A **45** 8185 (1992)

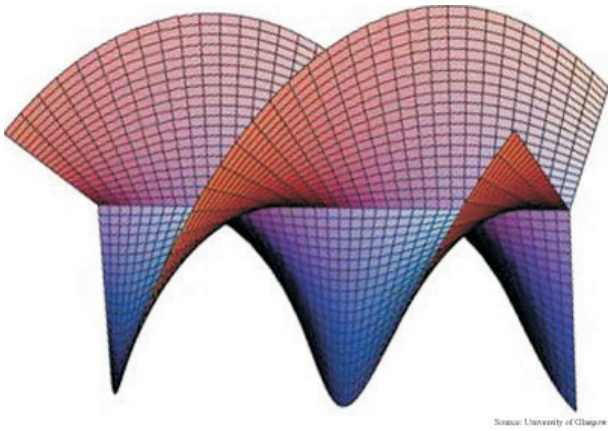

Fig. 3.1: Allure des surfaces équiphases d'une onde possédant un moment angulaire orbital correspondant à $m = 3$

ϕ et $\phi + 2n\pi$. L'expression du moment angulaire orbital d'un tel champ se calcule à partir de la relation(**??**). On trouve :

$$\mathbf{L}_R = \frac{H}{\omega} m \mathbf{e}_z \tag{3.118}$$

On constate que $\mathbf{L}_R$ est *relié à la structure transverse de l'amplitude du champ* : le front d'onde du champ doit être "hélicoïdal" pour que l'onde puisse transporter du moment cinétique orbital (voir figure 3.1). En effet dans l'onde décrite par l'expression (3.117), la phase est constante sur des hélices autour de l'axe Oz de pas λ/m, qui font donc m tours par longueur d'onde. Remarquons que lorsque $m \neq 0$, le champ doit s'annuler sur l'axe $0z$ axis pour éviter des discontinuités lorsque l'on croise l'axe $0z$.

Notons que les *modes de Laguerre-Gauss* TEM^*_{lm} ont bien une dépendance en ϕ conforme à l'équation (3.117). Ils transportent donc un moment cinétique orbital donné par (3.118). Ils forment de plus une base de l'espace des champs à l'approximation paraxiale. Si on décompose le potentiel vecteur complexe sur une telle base, on montre qu'on peut écrire :

$$\mathbf{L}_R = 2\varepsilon_0 L^3 \mathbf{e}_z \sum_\ell m \left|\mathcal{A}_\ell\right|^2 . \tag{3.119}$$

où l'indice collectif ℓ est ici la liste des indices nécessaires pour définir la base : les indices l and m du mode de Laguerre-Gauss, un entier n_z pour assurer la discrétisation de la base le long de l'axe $0z$ et l'indice $s = 1, 2$ pour la polarisation.

5.3 Opérateurs quantiques associés

a. Opérateur impulsion

On déduit de (3.108) l'expression suivante de l'opérateur impulsion du champ de rayonnement :

$$\hat{\mathbf{P}}_R = 2\varepsilon_0 L^3 \sum_\ell \frac{\omega_\ell}{2} \left(\hat{A}_\ell \hat{A}_\ell^\dagger + \hat{A}_\ell^\dagger \hat{A}_\ell \right) \mathbf{k}_\ell \tag{3.120}$$

qui s'exprime simplement en fonction des opérateurs $\hat{a}_\ell$ et $\hat{A}_\ell^\dagger$:

$$\hat{\mathbf{P}}_R = \sum_\ell \frac{\hbar \mathbf{k}_\ell}{2} \left(\hat{a}_\ell \hat{a}_\ell^\dagger + \hat{a}_\ell^\dagger \hat{a}_\ell \right) = \sum_\ell \hbar \mathbf{k}_\ell \hat{a}_\ell^\dagger \hat{a}_\ell \tag{3.121}$$

les termes comportant le facteur 1/2 apparaissant lorsqu'on utilise la relation de commutation 3.72 se compensant entre le mode ℓ et le mode "$-\ell$" de vecteur d'onde $\mathbf{k}_{-\ell} = -\mathbf{k}_\ell$.

Remarquons que la décomposition de l'impulsion totale du champ en une somme d'impulsions relatives à chaque mode pris isolément est spécifique à la décomposition sur la base des ondes planes progressives polarisées. Cette simplification ne se produit pas nécessairement si on utilise d'autres bases de modes. Par exemple, l'expression de l'impulsion décomposée sur les modes d'onde stationnaire ou Gaussiens fait intervenir une double somme sur ℓ et ℓ' qui comporte des termes croisés relatifs à deux modes.

b. Opérateurs moment cinétique intrinsèque et orbital

Les expressions 3.113 et 3.118 nous permettent de trouver l'expression de l'opérateur quantique moment cinétique intrinsèque $\hat{\mathbf{S}}_R$ sur une base de modes de polarisation rectiligne, puis circulaire

$$\hat{\mathbf{S}}_R = \sum_{\mathbf{n}} \hbar \left(\hat{a}_{n,1}^\dagger \hat{a}_{n,2} - \hat{a}_{n,1} \hat{a}_{n,2}^\dagger \right) \varepsilon_{\mathbf{k}} \tag{3.122}$$

$$\hat{\mathbf{S}}_R = \sum_{\mathbf{n}} \hbar \left(\hat{a}_{n,+}^\dagger \hat{a}_{n,+} - \hat{a}_{n,-}^\dagger \hat{a}_{n,-} \right) \varepsilon_{\mathbf{k}} \tag{3.123}$$

Enfin, dans la base des modes de Laguerre-Gauss, il est facile d'écrire l'opérateur moment cinétique orbital $\hat{\mathbf{L}}_R$:

$$\hat{\mathbf{L}}_R = \hbar \mathbf{e}_z \sum_\ell m \hat{a}_\ell^\dagger \hat{a}_\ell. \tag{3.124}$$

6. États stationnaires du rayonnement

6.1 états nombre : notion de photon

Nous avons introduit plus haut les états nombre, $\mid n_l\rangle$, états propres des opérateurs :

$$\widehat{N}_l \left|n_l\right\rangle = n_l \left|n_l\right\rangle \tag{3.125}$$

D'où :

$$\widehat{H}_R \left|n_1, n_2, ..., n_l, ...\right\rangle = \sum_l (n_l + \frac{1}{2})\hbar\omega_l \left|n_1, ..., n_l, ...\right\rangle \tag{3.126}$$

Ces états, états propres de l'hamiltonien, sont donc les *états stationnaires du champ*. Ils ont aussi la propriété suivante :

$$\widehat{\overrightarrow{P}} \left|n_1, n_2, ..., n_l, ...\right\rangle = \sum_l n_l \hbar \overrightarrow{k}_l \left|n_1, ..., n_l, ...\right\rangle \tag{3.127}$$

On constate un caractère additif de E et $\widehat{\overrightarrow{P}}$: l'état $\left|n_1, n_2, ..., n_l, ...\right\rangle$, du point de vue de son énergie et de sa quantité de mouvement, apparaît avoir les mêmes propriétés qu'un ensemble de particules sans interaction mutuelle, formé de n_1 particules d'énergie $\hbar\omega_1$ et de quantité de mouvement $\hbar\overrightarrow{k}_1$, de n_2 particules d'énergie $\hbar\omega_2$ et de quantité de mouvement $\hbar\overrightarrow{k}_2$,..., de n_l particules d'énergie $\hbar\omega_l$ et de quantité de mouvement $\hbar\overrightarrow{k}_l$ ... On appellera *photons* ces particules.

L'opérateur $\widehat{a}_l^+$ est donc l'*opérateur de création* d'un photon, et l'opérateur $\widehat{a}_l$ est l'*opérateur d'annihilation* d'un photon. $\widehat{N}_l$ est l'opérateur nombre de photons. On remarque que, comme le nombre de photons dans un mode donné est un entier quelconque, les photons sont des *bosons*.

D'une manière générale, seul l'état $\left|n_l = 1\right\rangle$ présente de fortes analogies avec l'état d'une particule matérielle isolée. L'état $\left|n_l = 1, n_{l'} = 1, ...\right\rangle$ correspond à plusieurs particules, chacune dans un mode différent. En revanche, l'état $\left|n_l\right\rangle$ avec $n_l > 1$ a un équivalent difficile à trouver pour une particule matérielle. Seules des dispositifs permettant de réaliser une *condensation de Bose-Einstein* sont à même d'accumuler plusieurs particules matérielles dans le même état quantique.

6.2 Propriétés des photons dans différents modes

Considérons maintenant les différents opérateurs que nous avons introduits ci-dessus, et qui apparaissent tous comme des combinaisons linéaires des opérateurs nombre $\hat{a}_\ell^\dagger \hat{a}_\ell$, et peuvent s'écrire :

$$\hat{0} = \sum_\ell \alpha_\ell \hat{a}_\ell^\dagger \hat{a}_\ell \tag{3.128}$$

où $\hat{0}$ est n'importe lequel des opérateurs $\hat{H}$, $\hat{\mathbf{P}}$ or $\hat{\mathbf{S}}$. La forme de cette expression implique que les états nombre définis sur la base des ondes planes progressives de polarisation circulaire $|\ell : n_\ell\rangle$ sont aussi des valeurs propres de $\hat{0}$ avec la valeur propre $n_\ell \alpha_\ell$.C'est ce qui nous a amenés à considérer les quantités α_ℓ comme attachées à chaque photon individuel. L'opérateur $\hat{0}$ peut aussi s'écrire en fonction des opérateurs de création et d'annihilation dans une autre base de modes :

$$\hat{0} = \sum_{m,m'} \left(\sum_\ell \alpha_\ell (U^{-1})_\ell^m U_{m'}^\ell \right) \hat{b}_m^\dagger \hat{b}_{m'} \tag{3.129}$$

que l'on ne peut en général écrire comme une combinaison linéaire des nouveaux opérateurs nombre $\hat{b}_m^\dagger \hat{b}_m$. Il en résulte que les nouveaux états nombre $|m : n_m\rangle$ ne sont pas en général états propres de $\hat{0}$.

Nous sommes donc conduits à la conclusion que, dans le cas général, *les photons n'ont pas nécessairement une énergie, une quantité de mouvement et un moment cinétique bien définis*. Les propriétés des photons dépendent donc de la base de modes utilisée pour les définir.

Considérons par exemple l'énergie $\hat{H}$, pour laquelle α_ℓ est égal à $\hbar\omega_\ell$. Un état à un photon ne sera un état propre de $\hat{H}$ que si la somme sur ℓ ne comporte que des modes de la même fréquence. On ne peut donc pas attribuer une énergie bien définie au photon émis par émission spontanée dont l'état est déterminé dans le chapitre 5, par exemple. Par contre, on peut montrer[2] que cet état est un état propre du moment cinétique orbital $\hat{\mathbf{L}}$ lorsque le photon d'émission spontanée est émis depuis un état atomique excité $|n, J, m\rangle$ vers un état fondamental $|n', J', m'\rangle$.

6.3 L'état fondamental du champ

L'état de plus basse énergie du champ, $|n_1 = 0, ..., n_l = 0, ...\rangle$, noté $|0\rangle$, est appelé le *vide* (de photons). On devrait aussi l'appeler *obscurité*, ou noir :

c'est l'état du champ lorsqu'on a coupé toutes les sources de lumière, y compris les sources thermiques (il faut donc en principe refroidir l'enceinte à $T = 0K$ pour l'obtenir). On a alors :

$$\widehat{H}\,|0\rangle = \sum_l \left(\frac{1}{2}\hbar\omega_l\right)|0\rangle = E_v\,|0\rangle \tag{3.130}$$

On constate que cet état a une énergie non nulle, appelée *énergie du vide*, ou *énergie de point zéro*, alors que l'énergie du vide (ou obscurité) classique, définie par $\{\alpha_l = 0\}$, est nulle. Calculons la valeur moyenne du champ électrique dans cet état :

$$\langle 0|\,\widehat{E}\,(\overrightarrow{r},t)\,|0\rangle = 0 \tag{3.131}$$

comme attendu, car :

$$\widehat{a}_l\,|0\rangle = 0 \quad \langle 0|\,\widehat{a}_l^+ = 0 \tag{3.132}$$

En revanche,

$$\langle 0|\,\widehat{\overrightarrow{E}}^2\,(\overrightarrow{r},t)\,|0\rangle = \sum_l (\mathcal{E}_l)^2 = \sum_l \frac{\hbar\omega_l}{2\varepsilon_0 L^3} \tag{3.133}$$

On constate que la *variance du champ ΔE n'est pas nulle dans le vide* : le vide est le siège de fluctuations de champ autour de zéro, qu'on appelle *fluctuations du vide*.

On voit que l'état du champ appelé, de manière assez arbitraire, vide, possède des propriétés physiques particulières. De manière imagée, on peut dire que le "vide" ce n'est pas "rien". On peut par exemple le constater en considérant l'état :

$$|\Psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|1\rangle + |0\rangle\right) \tag{3.134}$$

dans lequel on a "ajouté du vide" à un photon dans un mode donné, tous les autres modes étant vides. Cet état possède des propriétés très différentes de celles de l'état à un photon $|0\rangle$. Par exemple, dans cet état, $\langle\Psi|\,\overrightarrow{E}\,|\Psi\rangle \neq 0$, alors que pour l'état à un photon, $\langle 1|\,\overrightarrow{E}\,|1\rangle = 0$.

La "présence du vide" se manifeste par différents effets mesurables :

- Il conduit à des déplacements des niveaux atomiques. On sait en effet que pour la plupart des atomes, le déplacement des niveaux atomiques sous l'effet d'un champ électrostatique ("effet Stark") est proportionnel à E^2, et que dans le vide E^2 est non nul. De plus, dans l'atome d'hydrogène par exemple, ce déplacement n'est pas le même dans les différents sous-niveaux d'une même multiplicité de nombre quantique principal donné. Il y a alors

une levée de dégénérescence induite par les fluctuations du vide : c'est le *déplacement de Lamb, ou Lamb shift*, qui a été observé pour la première fois par Lamb et Retherford en 1949 entre les niveaux $2S_{\frac{1}{2}}$ et $2P_{\frac{1}{2}}$ de l'hydrogène. Ce faible écart énergétique, de l'ordre de 1GHz, ne peut pas s'expliquer sans faire intervenir la théorie quantique de l'électrodynamique. Cette observation eut un très grand retentissement, car elle montrait qu'on ne pouvait se contenter d'une théorie quantique de l'atome uniquement pour rendre compte des résultats expérimentaux .

- Les propriétés magnétiques de l'électron sont modifiées par la présence du vide : des expériences contemporaines de celles de Lamb ont montré que son moment magnétique est légèrement différent de la valeur déduite de l'équation de Dirac. Un calcul perturbatif à l'ordre le plus bas de l'effet du vide sur l'électron montre que son moment magnétique $\hat{\vec{M}}_e$ ne vaut pas $2\mu_B\hat{\vec{S}}/\hbar$, mais est égal à :

$$\hat{\vec{M}}_e = 2(1+\frac{\alpha}{2\pi})\frac{\mu_B}{\hbar}\hat{\vec{S}} \tag{3.135}$$

où $\hat{\vec{S}}$ est le moment cinétique de spin de l'électron, α la constante de structure fine et $\mu_B = q\hbar/2m$ le magnéton de Bohr.

- Le champ fluctuant du vide, lorsqu'il est en présence d'un atome excité "stimule" son retour vers l'état fondamental. C'est l'*émission spontanée*, phénomène bien connu car facilement observable, mais calculable seulement dans ce cadre. Nous reviendrons au chapitre 5 sur les deux phénomènes de déplacement de niveau et d'instabilité causés par le couplage au rayonnement quantifié.

- Les fluctuations du vide sont aussi à l'origine d'une force, qui s'exerce entre deux plaques conductrices parallèles proches l'une de l'autre. En effet, ces plaques sont soumises à la pression de radiation des fluctuations du vide de manière dissymétrique, puisqu'entre les deux plaques n'existent que les modes de résonance du Fabry-Perot, alors que tous les modes possibles existent à l'extérieur des deux plaques. Cette force, attractive, est appelée *force de Casimir*. Elle est proportionnelle à la surface A considérée et a pour expression :

$$F_{Casimir} = -\frac{\pi^2\hbar c}{240}\frac{A}{d^4} \tag{3.136}$$

où d est la distance entre les plaques.

- Les fluctuations du vide peuvent se coupler à d'autres états du champ à l'aide d'une lame semi-réfléchissante : Celle-ci, considérée classiquement, coupe un faisceau incident en deux faisceaux d'amplitudes strictement égales. D'un point de vue quantique, elle superpose les fluctuations du vide entrant de l'autre côté de la lame aux deux faisceaux sortants, et entraîne que ces deux faisceaux ne sont plus strictement identiques (ce type de phénomène sera étudié plus en détail dans le cours du deuxième semestre d'optique quantique).

Notons enfin le calcul précis de presque tous ces effets se heurte à des problèmes de *divergences*, dite catastrophes ultra-violettes : les expressions qui donnent l'énergie du vide $\sum_l \frac{1}{2}\hbar\omega_l$, les fluctuations de champ électrique du vide $\sum_l \frac{\hbar\omega_l}{2\varepsilon_0 L^3}$, le Lamb shift, conduisent à des quantités divergentes. Ce problème, décelé dès les débuts de l'électrodynamique quantique, en a constitué l'énigme essentielle. Les physiciens avaient alors coutume d'introduire une coupure haute-fréquence ad-hoc dans la somme sur les modes, argumentant que d'autres effets apparaissent dans la théorie lorsque $\hbar\omega$ devient supérieur à $2mc^2$. Le problème n'a vraiment été résolu qu'à la fin des années 40, lorsque Feynman, Schwinger, Tomonoga trouvèrent indépendamment une méthode pour éliminer les infinis de la théorie (dite méthode de "renormalisation"), ou plutôt pour les englober dans un petit nombre de quantités observables, par essence finies (voir le cours de théorie des champs). Ces méthodes permettent de prédire par exemple la valeur du Lamb shift avec une grande précision, valeur qui coïncide avec celle mesurée par toutes les expériences de métrologie de l'hydrogène faites jusqu'à ce jour (la précision actuelle sur les mesures de fréquences de Bohr de l'hydrogène est de l'ordre de 10^{-13} !)

7. *Propriétés ondulatoires du champ quantique : valeur du champ électrique dans un état quantique*

7.1 *Champ en représentation de Heisenberg*

Nous nous sommes placés jusqu'à présent en *représentation de Schrödinger*, dans laquelle les opérateurs sont indépendants du temps, et les états variables dans le temps. L'analogie avec la description classique est plus facile si on se place en *représentation de Heisenberg*, dans laquelle les opérateurs sont variables, et les états indépendants du temps. On passe de l'une à l'autre

par la transformation :

$$\widehat{O}_H = e^{\widehat{i}Ht/\hbar}\widehat{O}_S e^{-i\widehat{H}t/\hbar} \tag{3.137}$$

On a alors :

$$i\hbar\frac{d}{dt}\widehat{O}_H = \left[\widehat{O}_H, \widehat{H}\right] \tag{3.138}$$

Il nous suffit de connaître l'expression de l'opérateur d'annihilation en représentation de Heisenberg, qui évolue selon l'équation :

$$i\hbar\frac{d}{dt}\widehat{a}_l = \left[\widehat{a}_l, \widehat{H}\right] = \left[\widehat{a}_l, \hbar\omega_l\left(\widehat{a}_l^{+}\widehat{a}_l + \frac{1}{2}\right)\right] \tag{3.139}$$

On utilise l'expression suivante du commutateur :

$$\left[\widehat{a}, f(\widehat{a}^{+})\right] = f'\left(\widehat{a}^{+}\right) \tag{3.140}$$

pour en déduire :

$$i\hbar\frac{d}{dt}\widehat{a}_l = \hbar\widehat{\omega}_l\widehat{a}_l \tag{3.141}$$

et finalement :

$$\widehat{a}_l\left(t\right) = \widehat{a}_l\left(0\right)e^{-i\omega_l t}$$

avec : $\widehat{a}_l(0) = (\widehat{a}_l)_S = \widehat{a}_l$. On retrouve la dépendance temporelle qui était celle de la quantité classique équivalente.

On en déduit l'expression de $\widehat{E}_H^{(+)}\left(\overrightarrow{r}, t\right)$:

$$\overrightarrow{\widehat{E}}_H^{(+)}\left(\overrightarrow{r}, t\right) = \sum_l i\mathcal{E}_l\overrightarrow{\varepsilon}_l e^{i\left(\overrightarrow{k}_l.\overrightarrow{r}-\omega_l t\right)}\widehat{a}_l \tag{3.142}$$

L'opérateur champ (hermitien) s'écrivant :

$$\widehat{\overrightarrow{E}}_H\left(\overrightarrow{r}, t\right) = \widehat{\overrightarrow{E}}_H^{(+)} + \left(\widehat{\overrightarrow{E}}_H^{(+)}\right)^{\dagger} \tag{3.143}$$

Toutes ces expressions sont formellement identiques à celles des grandeurs classiques équivalentes. Mais les opérateurs quantiques ne commutent pas nécessairement. On a évidemment :

$$\left[\widehat{E}_{Hi}^{(+)}\left(\overrightarrow{r}, t\right), \widehat{E}_{Hj}^{(+)}\left(\overrightarrow{r}', t'\right)\right] = 0 \tag{3.144}$$

pour toutes les composantes cartésiennes de l'opérateur vectoriel, avec i et j égaux à x, y ou z. Mais ce n'est pas le cas pour l'opérateur hermitien $\overrightarrow{E}(\overrightarrow{r}, t)$. On peut montrer que :

$$\left[\widehat{E}_{Hi}(\overrightarrow{r}, t), \widehat{E}_{Hj}\left(\overrightarrow{r}', t'\right)\right] \neq 0 \tag{3.145}$$

si $\left|\overrightarrow{r} - \overrightarrow{r'}\right| = c\,|t - t'|$. L'expression exacte du commutateur est compliquée. On la trouvera par exemple dans la référence (1).

La conséquence essentielle de cette non-commutation est qu'on ne peut donc pas trouver d'état du champ qui soit état propre de l'opérateur champ électrique pour tout $\overrightarrow{r}$ et pour tout t : un état propre pour une valeur de $(\overrightarrow{r}, t)$ donnée ne le sera plus un peu plus loin, ou un peu plus tard. En théorie quantique, le champ électrique est ainsi une quantité qui, *dans tout état quantique*, présente des fluctuations d'origine quantique lorsqu'on varie $\overrightarrow{r}$ ou t. Le vide en est un exemple : l'existence des fluctuations du vide est due au fait que dans cet état, on ne peut pas avoir :

$$\overrightarrow{E}(\overrightarrow{r}, \overrightarrow{t}) \equiv 0 \quad \forall \overrightarrow{r}, \forall t$$

On voit ainsi que les règles de commutation quantique imposent des contraintes sur les résultats des mesures effectuées sur les champ électromagnétiques, dont les conséquences physiques seront détaillées dans le cours d'optique quantique du deuxième semestre.

7.2 Cas de l'état nombre ou état de Fock

Revenons à l'état propre de l'hamiltonien :

$$|\Psi\rangle = |n_1, ..., n_l, ...\rangle$$

que l'on appelle souvent *état nombre*, ou *état de Fock*. Comme $\widehat{a}_l\,|\Psi\rangle = \sqrt{n_l}\,|n_1, ..., n_l - 1, ...\rangle$, on a :

$$\langle\Psi|\,\widehat{a}_l\,|\Psi\rangle = 0$$

Il en résulte que :

$$\langle\Psi|\,E(\overrightarrow{r}, t)\,|\Psi\rangle = 0 \qquad \forall t \quad \forall \overrightarrow{r} \tag{3.146}$$

Le champ électrique est donc nul en moyenne dans les états nombre, comme dans un champ ayant une cohérence temporelle nulle. Il s'avère que ces états sont très pratiques pour les calculs, car ils sont simples à manipuler mathématiquement, mais ce sont des états aux propriétés étranges (on parle d'*états non-classiques*), car ils conduisent à des effets physiques souvent très différents de ceux prévus par l'électromagnétisme classique. Ils sont en outre *très difficiles* à produire (sauf $n = 0$) : l'état nombre $n_l = 1$, comme nous le verrons ultérieurement, est produit par l'émission spontanée d'un seul atome. Il s'agit d'une procédure expérimentale généralement compliquée, mais courante maintenant. Quelques rares expériences ont produit des états à deux photons. Des états de Fock avec n_l très grand n'ont jamais été produits (voir cours de deuxième semestre)

Il existe aussi des états nombres "multimodes", c'est à dire des états propres du *nombre total* de photons

$$\widehat{N} = \sum_l \widehat{N}_l \tag{3.147}$$

Les états de Fock sont de tels états, mais ils ne sont pas les seuls. Par exemple les états :

$$|\Psi\rangle = \sum c_{n_1...n_l} |n_1..., n_l\rangle \tag{3.148}$$

avec $\sum n_l = N$ sont états propres de $\widehat{N}$ avec la valeur propre N, mais pas séparément de chaque $\widehat{N}_l$. De tels états ne sont donc pas stationnaires. Un exemple important est l'état à un photon multimode :

$$|\Psi_1\rangle = \sum_l c_l |0...1...\rangle \tag{3.149}$$

où le 1 est dans le mode courant l. Cet état décrit une sorte de "paquet d'onde à un photon", proche de l'idée qu'on peut se faire du corpuscule "photon" se déplaçant à la vitesse de la lumière. mais la forme spatio-temporelle de ce paquet d'onde, et donc du "photon", n'est pas intrinsèque : elle dépend du choix des c_l.

Il n'existe pas d'état dans lequel le champ (et donc le photon) est localisé exactement en un point de l'espace. En effet un tel état serait caractérisé par un champ électrique de la forme :

$$\overrightarrow{E}(\overrightarrow{r}) = \overrightarrow{E}_0 \delta(\overrightarrow{r} - \overrightarrow{r}_0)$$

soit dans l'espace réciproque :

$$\overrightarrow{\mathcal{E}}\left(\overrightarrow{k}\right) = \overrightarrow{E}_0 e^{i\overrightarrow{k}.\overrightarrow{r}_0}$$

qui n'est pas un champ transverse ($\overrightarrow{E}_0$ n'est pas orthogonal à $\overrightarrow{k}$ pour tout $\overrightarrow{k}$). En d'autres termes, la fonction delta ne fait pas partie du sous-espace des champs vectoriels transverses. Le paquet d'onde du photon peut être localisé dans des volumes d'autant plus faibles qu'on superpose des modes de longueurs d'onde de plus en plus petites, mais il ne peut pas être rigoureusement localisé en un point (classiquement, on ne peut pas focaliser un champ en un point). Comme il n'y a pas d'état localisé $|\overrightarrow{r}_0\rangle$, il n'y a donc pas de fonction d'onde du photon à proprement parler $\langle\overrightarrow{r}_0|\ \Psi\rangle$.

7.3 Cas d'un état quelconque

Considérons l'état général :

$$|\Psi\rangle = \sum_{n_1,..n_l} c_{n_1...n_l...}\,|n_1..., n_l,...\rangle \tag{3.150}$$

On voit facilement que :

$$\langle\Psi|\,\widehat{\overrightarrow{E}}\,(\overrightarrow{r},t)\,|\Psi\rangle = \sum_l \alpha_l \overrightarrow{\varepsilon}_l e^{i(\overrightarrow{k}_l.\overrightarrow{r}-\omega_l t)} + comp.conj. \tag{3.151}$$

où le nombre complexe α_l est donné par :

$$\alpha_l = \sum_{n_1}...\sum_{n_l}...i\sqrt{n_l}C_{n_1...n_l...}C^*_{n_1...n_l-1}...\mathcal{E}_l \tag{3.152}$$

(Il vaut zéro pour un état nombre). Il en résulte que, dans n'importe quel état quantique, *la valeur moyenne du champ évolue comme le champ classique*. On ne peut donc distinguer les différents états quantiques, dans cet immense espace de Hilbert, sur la valeur moyenne qu'ils donnent au champ. Ce qui les différencie sont :

- les variances, c'est-à-dire les *fluctuations quantiques autour de la valeur moyenne*, $\Delta E(\overrightarrow{r},t)$, ainsi que les moments d'ordre supérieur de la distribution de probabilité ;

- les corrélations entre deux mesures différentes $<\widehat{\overrightarrow{E}}\,(\overrightarrow{r},t)\,\widehat{\overrightarrow{E}}\left(\overrightarrow{r}',t'\right)>$, et les corrélations d'ordre supérieur, entre plus de deux observables.

7.4 Cas de l'état cohérent

L'état du champ appelé état cohérent (ou état quasi-classique, ou état de Glauber) est l'état qui donne aux mesures effectuées sur une champ leurs valeurs "les plus classiques". Ce sont en particulier des états pour lesquels les corrélations

$$< \widehat{\overrightarrow{E}}\left(\overrightarrow{r},t\right)\widehat{\overrightarrow{E}}\left(\overrightarrow{r}',t'\right) >_{sym} - < \overrightarrow{E}\left(\overrightarrow{r},t\right) >< \overrightarrow{E}\left(\overrightarrow{r}',t'\right) >$$

sont minimales pour toutes valeurs de $\overrightarrow{r}$, $\overrightarrow{r}'$, t, t'.

État cohérent monomode : On se restreint tout d'abord au sous-espace correspondant aux états d'un mode de 1 donné.

Par définition, *un état cohérent est un état propre de* $\widehat{a}_l$:

$$\widehat{a}_l \left|\alpha\right\rangle = \alpha \left|\alpha\right\rangle \tag{3.153}$$

Ses propriétés seront étudiées en détail en TD. On montre que le spectre des valeurs propres α est l'ensemble des nombres complexes, et qu'il a la décomposition suivante sur la base des états de Fock :

$$\left|\alpha\right\rangle = \left(\sum_n \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} \left|0....0,n,0...\right\rangle\right) e^{-\left|\alpha\right|^2/2} \tag{3.154}$$

où n est dans le mode l uniquement. Le vide est en particulier l'état cohérent de valeur propre 0. On montre aisément que :

$$< \widehat{\overrightarrow{E}}\left(\overrightarrow{r},t\right)\widehat{\overrightarrow{E}}\left(\overrightarrow{r}',t'\right) >_{sym} - < \overrightarrow{E}\left(\overrightarrow{r},t\right)>< \overrightarrow{E}\left(\overrightarrow{r}',t'\right) >= \mathcal{E}_l^2 \tag{3.155}$$

où $\overrightarrow{E}_l(\overrightarrow{r},t)$ est la restriction au mode l de l'opérateur champ électrique. En particulier :

$$\Delta^2 E_l = \mathcal{E}_l^2$$

La variance des fluctuations du champ électrique dans un état cohérent est indépendante de $\langle E_l \rangle$. Elle est égale aux fluctuations du vide dans ce mode. Pour des champs intenses ΔE_l devient négligeable en valeur relative devant $\langle E_l \rangle$. On se trouve alors à la limite de l'électromagnétisme classique, où on peut négliger les fluctuations quantiques.

Rappelons certaines propriétés des états cohérents, dont on trouvera la démonstration dans les références données au début de ce cours :

- On peut les construire à partir du vide :

$$|\alpha\rangle = \widehat{D}(\alpha)\,|0\rangle$$

avec

$$\widehat{D}(\alpha) = \exp\left[\alpha\widehat{a}_l^+ - \alpha^*\widehat{a}_l\right]$$

$\widehat{D}(\alpha)$, équivalent de l'opérateur de translation $= e^{-i\widehat{p}.\frac{x_0}{\hbar}}$ pour l'oscillateur harmonique matériel, est appelé *opérateur de déplacement*. On peut montrer en effet que :

$$\widehat{D}^\dagger(\alpha)\widehat{a}\widehat{D}(\alpha) = \widehat{a} + \alpha$$

- On peut décomposer tout état sur les états cohérents. On a en effet la relation de fermeture :

$$\frac{1}{\pi}\iint |\alpha\rangle\,\langle\alpha|\,d(Re\alpha)d(Im\alpha) = 1$$

qui permet d'écrire :

$$|\Psi\rangle = \int f(\alpha)\,|\alpha\rangle\,d^2\alpha$$

mais cette décomposition n'est pas unique : l'ensemble des états cohérents est "sur-complet".

- Les états cohérents ne sont pas orthogonaux entre eux :

$$\langle\alpha|\,\alpha'\rangle = \exp\left(-\frac{|\alpha|^2}{2} - \frac{|\alpha'|^2}{2} - \alpha'\alpha^{+^*}\right)$$

et :

$$|\langle\alpha'|\,\alpha\rangle|^2 = e^{-|\alpha-\alpha'|^2}$$

Ils sont cependant pratiquement orthogonaux dès que $|\alpha - \alpha'|\rangle > 2$

Les états cohérents sont les états les plus faciles à produire expérimentalement :

- Les sources classiques de rayonnement électromagnétique (antenne, source micro-onde, ...) produisent ce type d'état ;

- La plupart des lasers, lorsqu'ils fonctionnent très au dessus du seuil, produisent ce type d'état ;

- Toutes les sources habituelles (lampes thermiques ou à décharge) produisent des champs qu'on peut considérer comme des *superpositions statistiques d'états cohérents* ;

- Un état lumineux quelconque très fortement atténué se rapproche d'un état cohérent.

État cohérent multimode : Les états cohérents $|\Psi_{coh}\rangle$ sont alors définis comme *états propres de l'opérateur champ complexe* $\widehat{\overrightarrow{E^{(+)}}}(\overrightarrow{r},t)$, c'est-à-dire :

$$\widehat{\overrightarrow{E^{(+)}}}(\overrightarrow{r},t)\,|\Psi_{coh}\rangle = \left\langle \widehat{\overrightarrow{E^{(+)}}}(\overrightarrow{r},t) \right\rangle |\Psi_{coh}\rangle \tag{3.156}$$

Les états produits tensoriels $|\alpha_1, ...\alpha_l, ...\rangle$ sont des cas particuliers d'états cohérents multimodes, mais il y en a beaucoup d'autres. Par exemple, l'état :

$$|\Psi_{coh}\rangle = \sum_l c_l\,|0\rangle \otimes |0\rangle \otimes ... \otimes \left|\frac{E_0}{\mathcal{E}_l}\right\rangle \otimes ...$$

où $\left|\frac{E_0}{\mathcal{E}_l}\right\rangle$ est un état cohérent monomode dans le mode l, est état propre de $\overrightarrow{E^{(+)}}$ avec la valeur propre E_0.

La variance du champ dans les états cohérents multimodes est donnée par :

$$\Delta^2 E = \sum_l \mathcal{E}_l^2 \tag{3.157}$$

Elle est égale à celles des fluctuations du vide multimode, et ce quelle que soit la valeur moyenne du champ.

8. Description du champ quantique par la fonction de Wigner

8.1 Definitions

La matrice densité qui décrit l'état quantique d'un champ, même monomode, est difficile à manipuler, car elle est de dimension infinie. On préfère souvent utiliser des *fonctions de distribution de quasi-probabilité*, qui sont des fonctions réelles de deux variables réelles, et qui, elles-aussi, décrivent complètement un état quantique monomode. Nous nous restreindrons ici à la description d'une d'entre elles, la fonction de Wigner, qui est la plus pratique quand on s'intéresse aux mesures d'intensité et de quadrature sur les champs.

Rappelons l'expression de l'opérateur déplacement, aussi appelé opérateur de Weyl :

$$\hat{D}(\lambda) = e^{\lambda \hat{a}_\ell^\dagger - \lambda^* \hat{a}_\ell} \tag{3.158}$$

Si on utilise les quantités réelles u, v définies par $\lambda = (u + iv)/\sqrt{2}$, cet opérateur s'écrit aussi :

$$\hat{D}(u, v) = e^{i(u\hat{q}_\ell + v\hat{p}_\ell)} \tag{3.159}$$

où les opérateurs hermitiens $\hat{q}_\ell$ et $\hat{p}_\ell$, donnés par :

$$\hat{q}_\ell = \frac{\hat{a}_\ell + \hat{a}_\ell^\dagger}{\sqrt{2}} \quad ; \quad \hat{p}_\ell = -i\frac{\hat{a}_\ell - \hat{a}_\ell^\dagger}{\sqrt{2}} \quad ; \quad \hat{a}_\ell = \frac{\hat{q}_\ell + i\hat{p}_\ell}{\sqrt{2}} \tag{3.160}$$

sont les versions sans dimension des opérateurs de quadrature du champ que nous avons introduits précédemment. Nous les appellerons aussi par extension opérateurs quadrature. Ce sont des opérateurs qui ne commutent pas entre eux et dont les variances obéissent à une inégalité de Heisenberg :

$$[\hat{q}_\ell, \hat{p}_\ell] = i \quad ; \quad \Delta q_\ell \Delta p_\ell \geq \frac{1}{2} \tag{3.161}$$

Nous appellerons $|q\rangle$ et $|p\rangle$ les états propres de $\hat{q}_\ell$ et $\hat{p}_\ell$, définis par :

$$\hat{q}_\ell|q\rangle = q|q\rangle \quad ; \quad \hat{p}_\ell|p\rangle = p|q\rangle \tag{3.162}$$

Ils sont les analogues pour le champ des états propres de la position et de la quantité de mouvement pour une particule matérielle.

$\hat{D}$ est l'opérateur qui "déplace" l'opérateur de création et les opérateurs quadrature :

$$\hat{D}\hat{a}_\ell\hat{D}^\dagger = \hat{a}_\ell + \lambda \quad ; \quad \hat{D}\hat{q}_\ell\hat{D}^\dagger = \hat{q}_\ell + v \quad ; \quad \hat{D}\hat{p}_\ell\hat{D}^\dagger = \hat{p}_\ell - u \tag{3.163}$$

La fonction de Wigner est définie comme *la transformée de Fourier de la valeur moyenne de l'opérateur déplacement* :

$$W(q, p) = \frac{1}{2\pi^2}\int dudvTr\left[\rho\hat{D}(u, v)\right] e^{-i(uq+vp)} \tag{3.164}$$

D'autres normalisations de cette fonction existent dans la littérature. On montre que la fonction de Wigner peut aussi s'écrire comme :

$$W(q, p) = \frac{1}{2\pi}\int dx\langle q - \frac{p}{2}|\rho|q + \frac{p}{2}\rangle e^{ipx} \tag{3.165}$$

Notons que ces définitions peuvent s'utiliser aussi en remplaçant la matrice densité ρ par n'importe quel opérateur hermitien $\hat{A}$. On définit ainsi une

fonction de Wigner $W_{\hat{A}}(q,p)$ associée à l'observable $\hat{A}$. On trouve facilement que :

$$W_{\hat{1}_\ell}(q,p) = \frac{1}{2\pi}; \quad W_{\hat{q}_\ell}(q,p) = \frac{1}{2\pi}q; \quad W_{\hat{p}_\ell}(q,p) = \frac{1}{2\pi}p \tag{3.166}$$

où $\hat{1}_\ell$ est l'opérateur identité dans le mode ℓ.

b- *Propriétés*

Beaucoup d'entre elles sont la conséquence d'un important théorème qui permet de calculer la trace d'un produit de deux observables en fonction du recouvrement des deux fonctions de Wigner associées :

$$Tr\hat{A}\hat{B} = 2\pi \int dpdqW_{\hat{A}}(q,p)W_{\hat{B}}(q,p) \tag{3.167}$$

On en déduit les propriétés suivantes :

- 1) Si on prend $\hat{A} = \rho$, $\hat{B} = \hat{1}_\ell$, on trouve que la fonction de Wigner est normalisée à 1 :

$$\int d\alpha W(\alpha) = \int dqdpW(q,p) = 1 \tag{3.168}$$

- 2) Si on prend $\hat{A} = \rho_1$, $\hat{B} = \rho_2$, on trouve une expression pour le produit scalaire $Tr\rho_1\rho_2$ entre les deux états (égal à to $|\langle\psi_1|\psi_2\rangle|^2$ dans le cas de deux états purs) :

$$Tr\rho_1\rho_2 = 2\pi \int dpdqW_1(q,p)W_2(q,p) \tag{3.169}$$

  Cette relation a une conséquence importante : quand deux états purs sont orthogonaux, $\langle\psi_1|\psi_2\rangle = 0$, et donc le recouvrement des fonctions de Wigner correspondantes est nul. Les fonctions de Wigner n'étant pas à support compact, cela ne peut se produire que si *l'une de ces deux fonctions comporte une partie négative*. Une fonction de Wigner peut donc prendre aussi bien des valeurs positives que négatives.
- 3) Si on prend $\hat{A} = \rho$, $\hat{B} = \rho$, on trouve une expression pour la pureté de l'état :

$$P = Tr\rho^2 = 2\pi \int dqdp(W(q,p))^2 \tag{3.170}$$

– 4) Si on prend $\hat{A} = \rho$, $\hat{B} = \hat{q}_\ell$ ou $\hat{B} = \hat{p}_\ell$, on trouve que la valeur moyenne des opérateurs de quadrature est l'intégrale de la quantité classique correspondante pondérée par la fonction de Wigner de l'état :

$$\langle \hat{q}_\ell \rangle = \int dqdp\, q\, W(q,p) \quad \langle \hat{p}_\ell \rangle = \int dqdp\, p\, W(q,p) \tag{3.171}$$

On peut montrer plus généralement que la valeur moyenne de tout produit symétrisé de n_1 opérateurs $\hat{q}_\ell$ et n_2 opérateurs $\hat{p}_\ell$, que nous écrirons $S\left(\hat{q}_\ell^{n_1}\hat{p}_\ell^{n_2}\right)$ [7], s'écrit comme l'intégrale de la quantité classique correspondante $q^{n_1}p^{n_2}$ pondérée par la fonction de Wigner. Cette expression, analogue à celle d'une valeur moyenne, nous incite à interpréter la fonction de Wigner comme une distribution de probabilité. Mais il ne peut s'agir d'une distribution classique, parce que les variables q_ℓ et p_ℓ sont complémentaires au sens de Bohr : les opérateurs correspondants ne commutent pas, et il n'existe aucun état quantique qui donne une valeur parfaitement déterminée à ces deux grandeurs simultanément. La fonction de Wigner a nécessairement une extension minimale dans l'espace des phases. De plus, la fonction de Wigner ne peut être une distribution de probabilité au sens classique, parce qu'elle prend des valeurs négatives. C'est la raison pour laquelle on l'appelle *densité de quasi-probabilité*.

– 5) La valeur moyenne de l'opérateur $\hat{q}_\ell$, par exemple, peut aussi s'écrire :

$$\langle \hat{q}_\ell \rangle = \int dq\; q\, Proba(q) \tag{3.172}$$

où $Proba(q)$ est la quantité :

$$Proba(q) = \int dp\, W(q,p) \tag{3.173}$$

Cette quantité, dont on montre qu'elle est positive, apparaît alors comme la "vraie" probabilité (on parle de "probabilité marginale") de trouver la valeur q quand on mesure l'opérateur $\hat{q}_\ell$.

c- *Exemples*

7. l'opérateur symétrisé $S\left(\hat{q}_\ell^{n_1}\hat{p}_\ell^{n_2}\right)$ est obtenu en sommant tous les termes possibles égaux au produit de n_1 opérateurs $\hat{q}_\ell$ et n_2 opérateurs $\hat{q}_\ell$ dans n'importe quel ordre et en divisant le résultat par le nombre de termes. Par exemple $S(\hat{q}_\ell\hat{p}_\ell) = (\hat{q}_\ell\hat{p}_\ell + \hat{p}_\ell\hat{q}_\ell)/2$

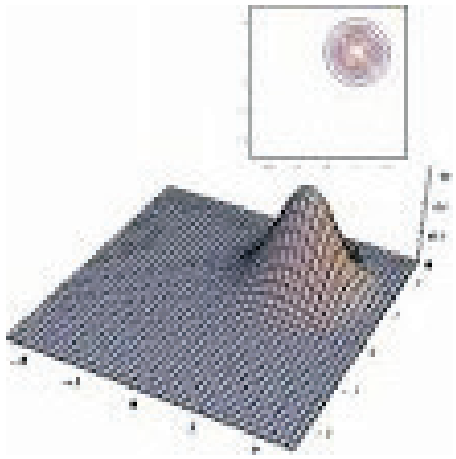

Fig. 3.2: Fonction de Wigner d'un état cohérent

Les fonctions de Wigner du vide et de l'état cohérent $|\alpha>$ s'écrivent :

$$W_0(q,p) = \frac{1}{\pi} e^{-(p^2+q^2)} \quad ; \quad W_\alpha(q,p) = \frac{1}{\pi} e^{-((p-p_0)^2+(q-q_0)^2)} \tag{3.174}$$

Ce sont des Gaussiennes de même largeur, centrées en 0 pour le vide, et autour des valeurs moyennes $q_0 =< \alpha|\hat{q}_\ell|\alpha >$, $p_0 =< \alpha|\hat{p}_\ell|\alpha >$ pour l'état cohérent. Elles prennent des valeurs partout positives. La fonction de Wigner d'un état à l'équilibre thermodynamique ("corps noir") est aussi Gaussienne. Elle vaut :

$$W_T(q,p) = \frac{1}{\pi(2n_T+1)} e^{-(p^2+q^2)/(2n_T+1)} \tag{3.175}$$

où n_T est le nombre moyen, de photons thermiques donné par la statistique de Bose Einstein : $n_T = 1/(exp(\hbar\omega/k_B T) - 1)$.

Les fonctions de Wigner des états nombres $|n>$ s'écrivent :

$$W_n(q,p) = (-1)^n \frac{1}{\pi} e^{-(p^2+q^2)} L_n(2p^2+2q^2) \tag{3.176}$$

$$W_0(q,p) = \frac{1}{\pi} e^{-(p^2+q^2)} \quad ; \quad W_1(q,p) = \frac{1}{\pi}(2p^2+2q^2-1) e^{-(p^2+q^2)}$$

où L_n est le polynôme de Laguerre. On remarque en particulier que $W_1(q = 0, p = 0) = -2/\pi$. Cette fonction de Wigner est négative à l'origine, ce qui confère à l'état à un photon, et aux états nombres en général, un caractère "encore plus quantique" qu'au vide par exemple.

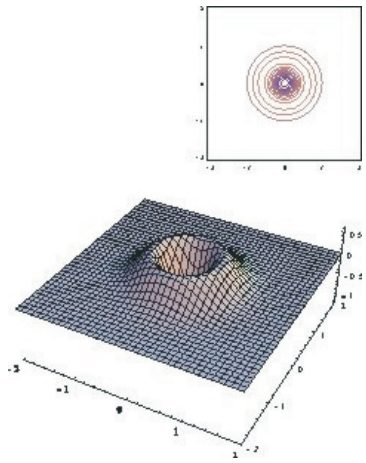

Fig. 3.3: Fonction de Wigner de l'état à un photon

Il est possible de relier la valeur de la fonction de Wigner à la parité du nombre de photons. Si l'on définit l'opérateur $\hat{\mathcal{P}}$ par :

$$\hat{\mathcal{P}}|n\rangle = (-1)^n|n\rangle \tag{3.177}$$

On a aussi

$$\hat{\mathcal{P}}|q\rangle = |-q\rangle \quad ; \quad \hat{\mathcal{P}}|p\rangle = |-p\rangle \tag{3.178}$$

On montre alors que :

$$W(q,p) = \frac{2}{\pi} Tr \rho \hat{D}(q+ip)\hat{\mathcal{P}}\hat{D}(-q-ip) \tag{3.179}$$

Il en résulte en particulier que $W(0,0)$ est à $2/\pi$ près la valeur moyenne de la parité dans l'état considéré. $W(0,0)$ sera en particulier négatif pour tous les états nombres de n impair.

9. Hamiltonien d'interaction entre atome et champ quantique

Nous avons maintenant tous les éléments pour résoudre le problème de l'interaction matière-rayonnement dans toute sa généralité. Dans cette section introductive, nous allons nous restreindre toutefois au cas où le système est seulement électromagnétique : le système champ + atome sera pris isolé, et les phénomènes de relaxation dus aux collisions entre atomes, ou à l'interaction avec le réseau cristallin, seront négligés.

9.1 Hamiltonien d'interaction classique en jauge de Coulomb

On trouvera dans la référence ([2]) un exposé détaillé de ces points. Considérons un ensemble de charges q_i de masses m_i, de coordonnées $\overrightarrow{r_i}$ et de vitesses $\overrightarrow{v_i}$ dépendant du temps. L'énergie totale du système atome + charges s'écrit de manière générale :

$$H = \sum_i \frac{1}{2} m_i \overrightarrow{v_i}^2 + \frac{\varepsilon_0}{2} \int_{(V)} d^3r (\overrightarrow{E}^2 + c^2 \overrightarrow{B}^2) \tag{3.180}$$

Le système étant isolé, H est une *constante du mouvement*. La jauge de Coulomb permet de séparer naturellement dans les champs une partie longitudinale "électrostatique" liée aux charges et une partie transverse liée aux champs de rayonnement. On peut écrire finalement :

$$H = \sum_i \frac{1}{2m_i} \left(\overrightarrow{p_i} - q_i \overrightarrow{A}(\overrightarrow{r_i}, t) \right)^2 + V_{coulomb} \tag{3.181}$$

$$+ \frac{\varepsilon_0}{2} \int_{(V)} d^3r \left((\frac{\partial \overrightarrow{A}(\overrightarrow{r}, t))}{\partial t})^2 + c^2 (\overrightarrow{rot} \overrightarrow{A}(\overrightarrow{r}, t)))^2 \right) \tag{3.182}$$

9.2 Hamiltonien "semi-quantique"

On fait encore une fois la moitié du chemin, mais cette fois l'autre : $(\overrightarrow{p}, \overrightarrow{q})$ restent classiques, mais les quantités électromagnétiques (potentiel vecteur $\overrightarrow{A}(\overrightarrow{r}_i, t)$ et énergie du champ libre) deviennent des opérateurs quantiques fonction des opérateurs d'annihilation et de création de photons :

$$\widehat{H}_{SQ} = \sum_i \frac{1}{2m_i} \left(\overrightarrow{p_i}(t) - q_i \widehat{\overrightarrow{A}}(\overrightarrow{r}_i, t)) \right)^2 + V_{coulomb} + \sum_l \hbar\omega_l (\widehat{a}_l^+ \widehat{a}_l + \frac{1}{2}) \tag{3.183}$$

L'hamiltonien $\widehat{H}_{SQ}$ est alors un opérateur agissant sur l'espace des seules variables du champ $\{| n_1, ..., n_l, ...\rangle\}$. Ce type d'approche est utile quand on n'a pas affaire à des atomes isolés mais à des "antennes" produisant un courant $\overrightarrow{j}(\overrightarrow{r}, t)$ classique qui est non perturbé par l'émission et l'absorption de photons. Le terme $\sum_i \frac{q_i}{m_i} \overrightarrow{p}_i(t).\widehat{\overrightarrow{A}}(\overrightarrow{r}_i, t)$ peut alors se mettre sous la forme de l'intégrale $\int\int\int d^3r \overrightarrow{j}(\overrightarrow{r}, t).\widehat{\overrightarrow{A}}(\overrightarrow{r}, t)$, et l'hamiltonien s'écrit alors, en négligeant le terme quadratique en potentiel vecteur et en retirant l'énergie de

la matière qui est constante :

$$\widehat{H'}_{SQ} = -\int\int\int d^3r \overrightarrow{j}(\overrightarrow{r},t).\widehat{\overrightarrow{A}}(\overrightarrow{r},t) + \sum_l \hbar\omega_l(\widehat{a}_l^+\widehat{a}_l + \frac{1}{2}) \tag{3.184}$$

Supposons par exemple que le courant source oscille à la fréquence ω. L'intégrale portant sur le courant, à l'approximation des grandes longueurs d'onde où $\overrightarrow{k_l}.\overrightarrow{r} << 1$, s'écrit alors :

$$\widehat{H}_{SQ,int} = \sum_l (\widehat{a}_l^+ + \widehat{a}_l)(A_l e^{-i\omega t} + A_l^* e^{i\omega t}) \tag{3.185}$$

où A_l est une constante qui décrit le recouvrement du mode avec la distribution du courant. On a donc affaire ici, comme dans le cas semi-classique développé précédemment, à un hamiltonien dépendant du temps, cette fois-ci à cause de la dépendance temporelle imposée du mouvement des charges, et non plus de celle du champ électromagnétique. Dans le cas d'une oscillation à la fréquence ω, on sait que cette dépendance temporelle va essentiellement induire des transitions vers des niveaux d'énergie distants de $\pm\hbar\omega$ du niveau initial. On peut donc restreindre l'évolution du champ à l'intérieur des modes de fréquence ω. Nous supposerons de plus que la géométrie du courant est telle qu'un seul de ces modes, indexé par l_0 est excité par les courants. L'hamiltonien semi-quantique s'écrit alors :

$$\widehat{H}_{SQ} = \hbar\omega\widehat{a}_{l_0}^+\widehat{a}_{l_0} + (\widehat{a}_{l_0}^+ + \widehat{a}_{l_0})(A_{l_0}e^{-i\omega t} + A_{l_0}^* e^{i\omega t}) \tag{3.186}$$

Plaçons-nous en représentation d'interaction, ce qui a pour effet de tenir automatiquement compte de l'évolution libre de l'opérateur $\widehat{a}_{l_0}(t) = \widehat{a}_{l_0}(t)e^{-i\omega t}$:

$$\widehat{\widetilde{H}}_{SQ} = e^{i\widehat{H}_{libre}/\hbar}\widehat{H}_{SQ}e^{-i\widehat{H}_{libre}/\hbar} \tag{3.187}$$

où $\widehat{H}_{libre} = \hbar\omega\widehat{a}_{l_0}^+\widehat{a}_{l_0}$. On obtient :

$$\widehat{\widetilde{H}}_{SQ} = \widehat{a}_{l_0}^+ A_{l_0} + \widehat{a}_{l_0}A_{l_0}^* + \widehat{a}_{l_0}^+ A_{l_0}^* e^{2i\omega t} + \widehat{a}_{l_0}A_{l_0}e^{-2i\omega t} \tag{3.188}$$

Nous allons négliger les deux derniers termes, "anti-résonnants", oscillant à des fréquences très élevées, par rapport aux deux premiers termes, qui sont indépendants du temps, et dont l'effet s'accumule au cours du temps (approximation séculaire). L'hamiltonien est alors indépendant du temps, et

l'état du champ à l'instant t est connu quand on connaît son état $|\Psi_0>$ à l'instant initial. Il s'écrit :

$$|\Psi(t)>= e^{-i(\widehat{a}^+_{l_0}A_{l_0}+\widehat{a}_{l_0}A^*_{l_0})t/\hbar}|\Psi_0> \tag{3.189}$$

L'opérateur d'évolution en représentation d'interaction n'est autre que *l'opérateur déplacement* $\hat{D}(\alpha_0(t))$ que nous avons introduit au moment de l'introduction des états cohérents, avec $\alpha_0(t) = -iA_{l_0}t/\hbar$. Si son état initial est le vide, *le champ se trouve donc à tout instant dans un état cohérent*, plus précisément dans l'état $|\alpha_0(t)>$. Le champ électrique complexe dans cet état a pour valeur moyenne dans cet état :

$$< \overrightarrow{\widehat{E}}^{(+)}(\overrightarrow{r},t) >= \frac{\omega A_{l_0}t}{2\epsilon_0 L^3}\overrightarrow{\varepsilon}_{l_0}e^{i\left(\overrightarrow{k}_l.\overrightarrow{r}-\omega_l t\right)} \tag{3.190}$$

En insérant l'expression exacte de A_{l_0}, il est facile de voir que la valeur moyenne du champ quantique est égale au champ qu'on calculerait directement à partir des équations de Maxwell. L'aspect quantique du champ rayonné par une source classique réside donc simplement dans ses fluctuations autour de la valeur moyenne, qui sont égales aux fluctuations du vide.

9.3 Hamiltonien quantique du système atome+champ

Il s'écrit :

$$\widehat{H} = \sum_i \frac{1}{2m_i}\left(\overrightarrow{\widehat{p}_i} - q_i\overrightarrow{\widehat{A}}(\overrightarrow{\widehat{r}}_i)\right)^2 + V_{coulomb} + \sum_l \hbar\omega_l(\widehat{a}^+_l\widehat{a}_l + \frac{1}{2}) \tag{3.191}$$

On a maintenant un hamiltonien sur l'espace de Hilbert produit tensoriel de l'espace de Hilbert de l'atome par celui des états du champ, dont un vecteur quelconque de la base naturelle s'écrit :

$$|i\rangle \otimes |n_1, ..., n_l, ...\rangle = |i; n_1, ..., n_l, ...\rangle$$

où $|i\rangle$ est un état stationnaire quelconque de l'atome. On voit que l'opérateur $\overrightarrow{\widehat{p_i}}$ n'agit que sur l'atome, et que les opérateurs $\widehat{a}^+_l\widehat{a}_l$ n'agissent que sur le champ, alors que

$$\overrightarrow{\widehat{A}}(\overrightarrow{\widehat{r_i}}) = \sum_l \sqrt{\frac{\hbar}{2\varepsilon_0\omega_l L^3}}\overrightarrow{\varepsilon_l}\widehat{a}_l e^{i\overrightarrow{k_l}.\overrightarrow{\widehat{r_i}}} + herm.conj \tag{3.192}$$

agit sur les deux parties de l'espace de Hilbert. Si on développe l'expression, on trouve finalement :

$$\widehat{H} = \widehat{H}_{at} + \widehat{H}_{ray} + \widehat{H}_{int} \tag{3.193}$$

$$\widehat{H}_{at} = \sum_i \frac{p_i^2}{2m_i} + V_{coulomb} \qquad \widehat{H}_{ray} = \sum_l \hbar\omega_l \left(\widehat{a}_l^+ \widehat{a}_l + \frac{1}{2}\right) \tag{3.194}$$

$$\widehat{H}_{int} = \widehat{H}_{i1} + \widehat{H}_{i2} \tag{3.195}$$

$$\widehat{H}_{i1} = -\sum_i \frac{q_i}{m_i} \widehat{\overrightarrow{p_i}}.\overrightarrow{A}(\widehat{\overrightarrow{r_i}}) \quad \widehat{H}_{i2} = \sum_i \frac{q_i^2}{2m_i} \widehat{\overrightarrow{A}}(\widehat{\overrightarrow{r_i}})^2 \tag{3.196}$$

9.4 Hamiltonien dipolaire électrique

A la limite des grandes longueurs d'onde, où λ est très grand devant les dimensions de l'atome, $\overrightarrow{r}_{electron} \approx \overrightarrow{R}_{noyau}$. On peut alors faire une transformation unitaire sur l'hamiltonien pour obtenir le hamiltonien dipolaire électrique, qui s'écrit :

$$\widehat{H} = \widehat{H'}_{at} + \widehat{H}_{ray} + \widehat{H'}_{int} \tag{3.197}$$

$$\widehat{H'}_{int} = -\widehat{\overrightarrow{D}}.\widehat{\overrightarrow{E}}(\widehat{\overrightarrow{R}}_{noyau}) \tag{3.198}$$

$$\widehat{H'}_{at} = \widehat{H}_{at} + E_{dip} \tag{3.199}$$

E_{dip} étant un terme d'énergie propre constant, qui peut être retiré de l'énergie totale. Si on ne s'intéresse pas au mouvement global de l'atome, $\overrightarrow{R}_{noyau}$ est fixe et pris pour origine des coordonnées. Il reste alors :

$$\widehat{H'_{int}} = -\widehat{\overrightarrow{D}}.\widehat{\overrightarrow{E}}(\overrightarrow{r} = \overrightarrow{0}) \tag{3.200}$$

Le champ électrique est alors un opérateur n'agissant que sur les états du champ. Si en revanche l'atome n'est pas immobile, $\widehat{\overrightarrow{E}}(\widehat{\overrightarrow{R}}_{noyau})$ agit aussi sur les variables externes : il peut y avoir mouvement global dû à l'interaction matière-rayonnement (ralentissement, refroidissement), qui sera étudié en cours d'option du deuxième semestre.

9.5 Considérations générales

- A la différence de l'approche du chapitre 2, l'atome n'est pas seul à évoluer, en présence d'un champ appliqué de l'extérieur et qui n'est pas affecté

par l'interaction : les deux systèmes sont affectés par l'interaction et sont susceptibles d'évoluer.

- Les deux hamiltoniens que nous venons d'introduire sont *indépendants du temps, puisqu'ils décrivent un système isolé*. Il y a là une très importante différence par rapport à l'hamiltonien semi-classique et l'hamiltonien semi-quantique, qui dépendaient sinusoïdalement du temps. Le système atome-champ possède donc des *énergies propres* E_λ et des *états propres* $|\Psi_\lambda\rangle$, qui s'écrivent :

$$|\Psi_\lambda\rangle = \sum C_{i;n_1,...,n_l,...} |i; n_1, ..., n_{l,...}\rangle \tag{3.201}$$

Un tel vecteur ne peut en général pas se factoriser :

$$|\Psi_\lambda\rangle \neq |\Psi_{at}\rangle \otimes |\Psi_{ray^t}\rangle \tag{3.202}$$

Il contient donc de *très fortes corrélations quantiques* entre l'atome et le champ. Si on se place du point de vue de l'atome, on dira que l'atome est en quelque sorte "habillé" par le champ qui l'entoure et avec lequel il interagit. E_λ est alors l'énergie de l'atome habillé.

- S'il y a des spins, il ne faut pas oublier de rajouter les termes d'interaction correspondants :

$$\sum_i g_i \frac{\mu_B}{\hbar} \overrightarrow{S_i} \widehat{\overrightarrow{B}}(\overrightarrow{R}_{noyau}) \tag{3.203}$$

où g_i est le facteur gyromagnétique (2 pour l'électron), et $\overrightarrow{S_i}$ l'opérateur spin de l'électron.

10. Processus d'interaction

10.1 Position du problème

On suppose qu'à l'instant $t = 0$ il n'y a pas de couplage entre l'atome et le champ. Les états stationnaires du système sont alors les états "atome-champ" : $|i; n_1, ...n_l, ...\rangle$. On "branche" ensuite l'interaction, et on cherche à savoir dans quel état se trouve le système au bout d'un certain temps T. Comme on ne veut faire qu'une exploration qualitative des différents processus possibles, on adoptera ici une approche perturbative, et on envisagera successivement les deux premiers ordres du développement perturbatif.

- Au premier ordre de la théorie des perturbations, la probabilité de transition de l'état atome-champ i vers l'état atome-champ f, $P_{i\to f}$, est propor-

tionnelle à l'élément de matrice $\left|\langle i|\,\widehat{H}_{int}\,|f\rangle\right|^2$. D'autre part les transitions se font à énergie constante car l'hamiltonien est indépendant du temps.

-Au deuxième ordre de la théorie des perturbations, la probabilité de transition $P_{i\to f}$ est proportionnelle à :

$$\left|\sum_r \langle i|\,H_{int}\,|r\rangle\,\frac{1}{E_i-E_r}\,\langle r|\,H_{int}\,|f\rangle\right|^2 \tag{3.204}$$

où $|r\rangle$ est un niveau "relais" quelconque du système atome-champ, toujours avec la contrainte de conservation de l'énergie pour les niveaux initiaux et finaux (mais pas intermédiaires) de la transition : $|E_i-E_f|<\frac{2\pi\hbar}{T}$. Notons que le processus est d'autant plus efficace que $E_r\approx E_i=E_f$.

10.2 Processus du premier ordre

On va utiliser ici l'hamiltonien dipolaire électrique et se placer dans le cas simple d'un atome à un électron, supposé immobile à l'origine des coordonnées et de masse infinie. On a alors

$$\widehat{H'}_{int}=-i\sum_l \mathcal{E}_l\widehat{\overrightarrow{D}}.\overrightarrow{\varepsilon}_l(\widehat{a}_l-\widehat{a}_l^+) \tag{3.205}$$

en supposant $\overrightarrow{\varepsilon}_l$ réel. Rappelons que, dans un atome, les seuls éléments de matrice du dipôle éventuellement non nuls sont les éléments non diagonaux $\langle a|\,\widehat{\overrightarrow{D}}.\overrightarrow{\varepsilon_l}\,|b\rangle$. L'état $|a;n_1...,n_l,...\rangle$ est donc connecté à tous les états $|b;n_1,...n_l\pm1,...\rangle$ pour toutes les valeurs de l avec la contrainte

$$E_a+\sum_{l'}n_l\hbar\omega_l=E_b+\sum_{l'}n_{l'}\hbar\omega_{l'}\pm\hbar\omega_l \tag{3.206}$$

Dans le cas du signe moins, on a $E_b=E_a+\hbar\omega_l$. Il y a *excitation* de l'atome, avec annihilation d'un photon dans le mode l, donc absorption du rayonnement. L'élément de matrice correspondant est $\sqrt{n_l}\,\langle b|\,\widehat{\overrightarrow{D}}.\overrightarrow{\varepsilon_l}\,|a\rangle$. La probabilité du processus est donc proportionnelle à n_l, c'est-à-dire à l'énergie du champ. Dans le cas du signe plus, on a $E_b=E_a-\hbar\omega_l$. Il y a *désexcitation* de l'atome, avec création d'un photon dans le mode l, donc émission stimulée. L'élément de matrice correspondant est $\sqrt{n_l+1}\,\langle b|\,\widehat{\overrightarrow{D}}.\overrightarrow{\varepsilon_l}\,|a\rangle$. La probabilité

du processus est donc proportionnelle à n_l+1. Si n_l+1 est grand, la probabilité du processus d'émission stimulée est aussi proportionnelle à l'énergie du champ. Mais ce processus est possible même si $n_l = 0$, donc dans le vide : il s'agit alors du processus d'*émission spontanée*, que nous étudierons plus en détail dans le chapitre suivant.

La probabilité de transition pour ces différents processus est aussi proportionnelle à l'élément de matrice atomique $\left|\langle b|\,\widehat{\overrightarrow{D}}.\overrightarrow{\varepsilon_l}\,|a\rangle\right|^2$, qui peut être nul entre certains niveaux atomiques. Il n'y a pas de transition possible dans ce cas au premier ordre de perturbation. Il y a donc des *règles de sélection*, dépendant de la polarisation du champ $\overrightarrow{\varepsilon_l}$, qui sont les mêmes qu'en théorie semi-classique, et que nous rappelons ici :

- cas de la polarisation π (linéaire parallèle à l'axe Oz de quantification des sous-niveaux Zeeman)

$$\Delta m = 0 \qquad \Delta l = \pm 1 \qquad \Delta J = 0 \pm 1$$

- cas de la polarisation σ^+ (circulaire directe dans le plan xOy)

$$\Delta m = 1 \qquad \Delta l = \pm 1 \qquad \Delta J = 0 \pm 1$$

- cas de la polarisation σ^- (circulaire inverse dans le plan xOy)

$$\Delta m = -1 \qquad \Delta l = \pm 1 \qquad \Delta J = 0 \pm 1$$

10.3 Processus du deuxième ordre

Le terme d'interaction $\overrightarrow{E}.\overrightarrow{D}$ fait passer de l'état $|a; n_1...n_l, ...\rangle$ à l'état intermédiaire $|b; n_1...n_l \pm 1, ...\rangle$, puis à l'état final $|c; n_1...n_l \pm 1, n_{l'} \pm 1, ...\rangle$, ou bien à l'état $|c; n_1..., n_l \quad ou \quad n_l \pm 2, ...\rangle$, avec la contrainte :

$$E_a = E_c \pm \hbar\omega_l \pm \hbar\omega_{l'} \tag{3.207}$$

(avec éventuellement $l = l'$) et la condition :

$$\langle a|\,\widehat{\overrightarrow{D}}.\overrightarrow{\varepsilon_l}\,|b\rangle\,\langle b|\,\widehat{\overrightarrow{D}}.\overrightarrow{\varepsilon_{l'}}\,|c\rangle \neq 0 \tag{3.208}$$

Remarquons qu'on peut maintenant avoir $c = a$. Il y a donc deux types de processus :

- Les processus *élastiques*, où $|c\rangle = |a\rangle$. Il y a conservation de l'état atomique, et nécessairement $\omega_l = \omega_{l'}$. La transition s'effectue de l'état $|a; n_1..., n_l, ...\rangle$ à l'état $|a; n_1..., n_l - 1, ..., n_{l'} + 1, ...\rangle$. Un photon disparaît, un autre apparaît de même énergie, mais de $\overrightarrow{k_l}$ différent. Il s'agit d'un processus de *diffusion élastique*. La probabilité de transition est proportionnelle à $n_l(n_{l'}+1)$. Il faut donc nécessairement qu'il y ait des photons dans l'état initial, mais on peut avoir $n_{l'} = 0$ pour le mode du photon émis. Il s'agit alors d'une *diffusion spontanée*. Dans le cas $n_{l'} \neq 0$, la diffusion, dite *stimulée*, est évidemment beaucoup plus efficace.

- Les processus *inélastiques*, où $|c\rangle \neq |a\rangle$ (avec $E_c \neq E_a$).

- Lorsque $E_a = E_c \pm 2\hbar\omega_l$, il y a *transition à deux photons*, soit en absorption, soit en émission. La probabilité de ces deux processus est respectivement proportionnelle à $n_l(n_l-1)$ et $(n_l+1)(n_l+2)$. Par un raisonnement analogue aux précédents, on voit qu'il y a possibilité d'*émission spontanée à deux photons*, lorsque les règles de sélection interdisent l'émission spontanée à un photon : c'est le cas du niveau $2S_{1/2}$ de l'hydrogène. Pour ces processus à deux photons, on applique deux fois les règles de selection. On a donc en particulier : $\Delta_l = 0, \pm 2$.

- Lorsque $E_a = E_c \pm (\hbar\omega_l + \hbar\omega_{l'})$, il y a transition à deux photons avec deux photons "inégaux", dont les caractéristiques sont très analogues au cas précédent.

- Lorsque $E_a = E_c + (\hbar\omega_l - \hbar\omega_{l'})$, la transition se fait de l'état $|a; n_1..., n_l...\rangle$ à l'état $|c; n_1..., n_l + 1, ..., n_{l'} - 1\rangle$. Encore une fois, un photon apparaît un autre disparaît, mais de fréquence différente : il, s'agit maintenant de *diffusion inélastique* ou *diffusion Raman*. Celle-ci peut être spontanée, si $n_l = 0$, ou stimulée, si $n_l \neq 0$. Ce processus a une grande importance en spectroscopie.

11. Photodétection

Les observables que nous avons introduites jusqu'ici ne correspondent pas nécessairement à des observations réalisables dans l'état actuel de la technologie. En particulier le champ électrique d'une onde lumineuse, à cause de la très grande rapidité de son oscillation, n'est pas directement mesurable, alors que celui d'une onde radiofréquence, qui oscille beaucoup moins vite, est mesurable (jusqu'à des fréquences ν de l'ordre de 100GHz environ). Jusqu'à présent, on n'a pas mis au point d'"oscilloscope à champ optique", et on me-

sure seulement des quantités moyennées sur un grand nombre d'oscillations du champ optique :

- Les bolomètres, les pellicules photographiques ou l'oeil sont sensibles à l'énergie du champ, même très faible, avec une sensibilité qui dépend de la longueur d'onde et s'annule à l'extérieur d'une bande de pulsation $\Delta\omega$. Ces détecteurs, qualifiés de détecteurs "énergétiques", mesurent l'observable $\widehat{H}$, plus précisément sa restriction aux modes inclus dans la bande $\Delta\omega$.

- D'autres photodétecteurs sont basés sur une transition d'un état discret vers un continuum sous l'effet du champ incident. Dans les photomultiplicateurs, le rayonnement incident ionise les atomes métalliques de la surface sensible. Les électrons ainsi libérés sont ensuite multipliés par un processus d'avalanche. Dans les photodiodes, le rayonnement incident crée des paires électrons trous dans la jonction entre deux semi-conducteurs dopés p et n. Ici aussi ce processus n'est efficace que dans la bande $\Delta\omega$ de fréquence de rayonnement permettant de peupler efficacement le continuum.

Supposons que le rayonnement incident sur le photodétecteur se trouve dans l'état $|\phi_R\rangle$, le photodétecteur dans son état fondamental $|a>$, et que le photodétecteur est précédé d'un polariseur, qui ne le rend sensible qu'au rayonnement de polarisation $\vec{\varepsilon}$. La probabilité de transition par unité de temps p_{af} depuis cet état initial vers un état final dans lequel le détecteur se trouve dans l'état $|f>$ du continuum d'énergie E_f s'obtient par la règle d'or de Fermi. p_{af} étant proportionnelle au carré de l'élément de matrice de transition, on peut écrire :

$$p_{af} = \alpha_1 \left| \sum_{\phi'_R} \langle f; \phi'_R | \, \widehat{\vec{E}}.\widehat{\vec{D}} \, |a; \phi_R\rangle \right|^2 \delta(E_f - E_a - \hbar\omega) \tag{3.209}$$

où α_1 est une constante et $|\phi'_R>$ un état final du rayonnement, résultant de l'absorption d'un photon à partir de l'état $|\phi_R>$. Dans l'élément de matrice intervient seulement la restriction de la partie de fréquence positive de l'opérateur champ $\widehat{E}^{(+)}_\omega$, combinaison linéaire des seuls opérateurs de destruction de pulsation $\omega = (E_f - E_a)/\hbar$ et de polarisation $\vec{\varepsilon}$. On peut donc écrire :

$$p_{af} = \alpha_1 |d_{af}|^2 \sum_{\phi'_R} \langle \phi_R | \left(\widehat{E}^{(+)}_\omega \right)^+ |\phi'_R\rangle \, \langle \phi'_R | \, \widehat{E}^{(+)}_\omega \, |\phi_R\rangle \tag{3.210}$$

où d_{af} est l'élément de matrice de la composante du dipôle le long de $\vec{\varepsilon}$ entre les états $|a>$ et $|f>$ du détecteur. Comme on somme sur tous les états finaux

possibles du rayonnement s'introduit la relation de fermeture sur ceux-ci :

$$p_{af} = \alpha_1 |d_{af}|^2 \langle \phi_R | \left(\widehat{E}_\omega^{(+)} \right)^+ \widehat{E}_\omega^{(+)} | \phi_R \rangle \tag{3.211}$$

Il suffit alors de sommer sur tous les points de la surface sensible S_d du détecteur et sur tous les états finaux f du détecteur à l'intérieur de la bande de sensibilité $\Delta\omega$ pour obtenir l'expression générale de la valeur moyenne du photo-courant moyen produit lorsqu'il est illuminé par l'état $|\phi_R\rangle$:

$$\langle i \rangle = \alpha \int_{S_d} d^2r \int_{\Delta\omega} d\omega R(\omega) \langle \phi_R | \left(\widehat{E}_\omega^{(+)}(\overrightarrow{r}, t) \right)^+ \widehat{E}_\omega^{+}(\overrightarrow{r}, t) | \phi_R \rangle \tag{3.212}$$

α étant une nouvelle constante de proportionnalité. $R(\omega)$, proportionnel à $|d_{af}|^2$ et à la densité d'états, apparaît comme l'expression de la sensibilité du photodétecteur à un rayonnement de pulsation ω. Cette expression est l'analogue quantique de l'expression classique :

$$i = \alpha \int_{S_d} d^2r \int_{\Delta\omega} d\omega R(\omega) \left| E^{(+)}(\overrightarrow{r}, t) \right|^2$$

où $E^{(+)}(\overrightarrow{r}, t)$ est le champ complexe classique.

Un photodétecteur de très petite surface et de sensibilité constante dans l'intervalle $\Delta\omega$ "mesure" donc la valeur moyenne de l'observable :

$$\hat{\Phi} = \left(\widehat{E}^{(+)}(\overrightarrow{r}, t) \right)^+ \left(\widehat{E}^{+}(\overrightarrow{r}, t) \right) \tag{3.213}$$

où la somme sur les modes ne s'étend que sur ceux de pulsation appartenant à l'intervalle $\Delta\omega$ et de polarisation $\vec{\varepsilon}$. C'est l'observable *photodétection au point* $\overrightarrow{r}$ *et à l'instant* t, qui donne en définitive la meilleure idée de la "probabilité de présence" en $\overrightarrow{r}$ du photon. Remarquons que si $|\phi_R\rangle = |0\rangle$, le signal du photodétecteur est nul : on ne peut pas détecter directement les fluctuations du vide.

Certains photodétecteurs ont un rendement quantique égal à 1, c'est-à-dire que chaque photon incident produit à coup sûr une transition dans le photodétecteur. C'est le cas par exemple des photodiodes au silicium aux alentours de $0,8\mu m$. Dans ce cas le flux numérique de photons est égal au flux numérique d'électrons. On montre facilement que la constante α vaut alors :

$$\alpha = \frac{2q\varepsilon_0 c}{\hbar\omega_0}$$

où ω_0 est la pulsation correspondant au centre de la bande $\Delta\lambda$.

On montre que dans ces conditions l'observable photodétection $\hat{\Phi}$ permet de déterminer non seulement la valeur moyenne du photocourant mais aussi sa variance ainsi que les corrélations quantiques spatiales ou temporelles des photocourants ([2]).

4. EMISSION SPONTANÉE

La notion de niveaux d'énergie des atomes a été introduite par Bohr, puis établie sur des bases solides avec le développement de la mécanique quantique (équations de Schrôdinger, puis de Dirac). Ces approches successives ont été en mesure de déterminer avec une précision de plus en plus grande la position de ces niveaux. Mais toutes ont failli sur un point : elles n'ont pas réussi à expliquer un fait expérimental facilement observable : l'instabilité des niveaux excités des atomes, et les caractéristiques de la lumière produite par la désexcitation spontanée de l'atome ("émission spontanée"). Seule la théorie complètement quantique de l'interaction atome-champ parvient à expliquer ce phénomène majeur de l'optique quantique. C'est certainement le plus beau succès de cette théorie.

1. Approche perturbative

1.1 Généralités

On part d'un atome dans l'état excité $|b\rangle$ en présence du vide. L'état initial, qui est donc $|b;0\rangle$, est couplé par le terme d'interaction $\widehat{H}'_{int}$ aux états $|a;...,1_l,....\rangle$: la théorie des perturbations au premier ordre permet de prévoir qu'il va y avoir probabilité non nulle de transition entre les deux niveaux, donc émission d'un photon dans un mode quelconque, lorsque les deux états ont la même énergie, c'est-à-dire lorsque $E_b = E_a + \hbar\omega_l$, ou $\omega_l = \omega_0$. La fréquence du photon est donc la fréquence de Bohr de la transition. Cependant, la polarisation du mode n'est a priori pas fixée, et les angles polaires θ et ϕ définissant la direction du vecteur $\overrightarrow{k}_l$, donc la direction d'émission du photon spontané, varient continûment. Il y a donc un continuum d'états finaux possibles.

1.2 Règle d'or de Fermi

Pour des temps pas trop longs après $t = 0$, on peut appliquer la règle d'or de Fermi : la probabilité de transition par unité de temps $d\Gamma_{sp}$ d'émission spontanée dans une direction Ω définie par les angles θ, ϕ, à $d\Omega$ près, vaut donc :

$$d\Gamma_{sp} = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \langle b; 0| \widehat{\overrightarrow{E}}.\widehat{\overrightarrow{D}} |a...1_l...\rangle \right|^2 \rho(E = \hbar\omega_0, \Omega) \tag{4.1}$$

où $\rho(E, \Omega)$ est la densité des modes du champ dont les vecteurs d'onde $\overrightarrow{k_l}$ correspondent à l'énergie E à dE près, et pointent dans la direction Ω à $d\Omega$ près.

L'élément de matrice vaut :

$$\mathcal{E}_l^2 \left| \langle b| \widehat{\overrightarrow{D}}.\overrightarrow{\varepsilon_l} |a\rangle \right|^2 \tag{4.2}$$

Sa valeur exacte dépend du choix des états $|a\rangle$ et $|b\rangle$. Si on prend par exemple un état initial S ($|a\rangle = |l = 0, m = 0\rangle$), et un état final P avec $m = 0$ ($|b\rangle = |l = 1, m = 0\rangle$), on peut montrer que :

$$\left| \langle b| \widehat{\overrightarrow{D}}.\overrightarrow{\varepsilon_l} |a\rangle \right|^2 = d_{ab}^2 \left(\overrightarrow{e_z}.\overrightarrow{\varepsilon_l}\right)^2 \tag{4.3}$$

où $\overrightarrow{e_z}$ est le vecteur unitaire de l'axe Oz.

La densité d'état dans l'espace des $\overrightarrow{k}$ est uniforme et vaut $\left(\frac{L}{2\pi}\right)^3$. Par un calcul déjà vu en thermodynamique statistique, on en déduit :

$$d\rho\left(E, \Omega\right) = \frac{dN}{dE} = \left(\frac{L}{2\pi}\right)^3 \frac{E^2}{(\hbar c)^3} d\Omega = \left(\frac{L}{2\pi}\right)^3 \frac{\omega_0^2}{\hbar c^3} d\Omega \tag{4.4}$$

Elle est indépendante de Ω.

On obtient finalement l'expression suivante de la probabilité d'émission spontanée d'un photon de polarisation $\overrightarrow{\varepsilon_l}$ dans la direction (Ω) :

$$\frac{d\Gamma_{sp}}{d\Omega} = \frac{\omega_0^3 d_{ab}^2 \left(\overrightarrow{e_z}.\overrightarrow{\varepsilon_l}\right)^2}{8\pi^2 \varepsilon_0 \hbar c^3} \tag{4.5}$$

où $d_{ab} = q \langle b| z |a\rangle$. La dépendance angulaire et en polarisation de l'émission spontanée est contenue dans le facteur $\left(\overrightarrow{e_z}.\overrightarrow{\varepsilon_l}\right)^2$: sa polarisation a donc nécessairement une composante parallèle à l'axe Oz, et l'émission est maximale

lorsque le photon est émis dans le plan xOy, et nulle pour une émission le long de l'axe Oz.

Pour obtenir la probabilité totale Γ_{sp}, il faut sommer sur les polarisations et les directions d'émission. Puisque $\overrightarrow{\varepsilon_1}$, $\overrightarrow{\varepsilon_2}$ et $\frac{\overrightarrow{k}}{k}$ forment un trièdre, on a :

$$(\overrightarrow{e_z}.\overrightarrow{\varepsilon_1})^2 + (\overrightarrow{e_z}.\overrightarrow{\varepsilon_2}) = 1 - \left(\overrightarrow{e_z}.\frac{\overrightarrow{k}}{k}\right)^2 = sin^2\theta \tag{4.6}$$

On en déduit :

$$\Gamma_{sp} = \int d\Omega \frac{\omega_0^3 d_{ab}^2 \sin^2\theta}{8\pi^2\varepsilon_0\hbar c^3}$$

Comme $\int \sin^2\theta d\Omega = \frac{8\pi}{3}$, on a finalement :

$$\Gamma_{sp} = \frac{\omega_0^3 d_{ab}^2}{3\pi\varepsilon_0\hbar c^3} \tag{4.7}$$

Dans le cas où ω_0 est dans le domaine optique ($\lambda = 0,6\mu m$), et pour un élément de matrice dipolaire électrique valant $0,5.10^{-10}m \times q$, Γ_{sp} vaut environ $3\times10^8 s^{-1}$. Un temps typique d'émission spontanée dans ces conditions est donc $T_{sp} = \Gamma_{sp}^{-1} \sim 3 \times 10^{-9}s$. D'autre part on voit que Γ_{sp} est proportionnel, toutes choses égales d'ailleurs, à ω_0^3. Le taux d'émission spontanée augmente donc rapidement avec la fréquence du champ émis. Si $\frac{\omega_0}{2\pi} \sim 1GHz$ (niveaux hyperfins), $\Gamma_{sp} \sim 10^{-6}s^{-1}$, donc T_{sp} est pratiquement infini. En revanche, si $\frac{\omega_0}{2\pi}$ est très grand, (domaine des UV ou des rayons X), l'émission spontanée est extrêmement efficace : $\Gamma_{sp} \sim 10^{12}s^{-1}$. Le temps d'émission spontanée est alors de l'ordre de la picoseconde, voire de la femtoseconde.

Par contre, si pour des raisons variées, et en particulier de symétrie des niveaux atomiques, l'élément de matrice d_{ab} est nul, le taux d'émission spontanée est nul lui-aussi : le niveau excité est dit "métastable". C'est le cas par exemple du niveau $2S$ de l'hydrogène. Pour calculer sa durée de vie, beaucoup plus longue que les ordres de grandeurs donnés dans le paragraphe précédent, il faut utiliser la théorie des perturbations à un ordre supérieur : Le niveau $2S$ se désexcite en émettant deux photons d'émission spontanée avec une durée de vie de l'ordre d'une fraction de seconde.

2. Approche non perturbative (Wigner-Weisskopf)

2.1 Fonction d'onde du système

Si à $t = 0$ le système est dans l'état $|b;0\rangle$, il se trouve à tout instant ultérieur dans l'état :

$$|\Psi(t)\rangle = \gamma_0(t)\,|b;0\rangle + \sum_l \gamma_l(t)\,|a;1_l\rangle \tag{4.8}$$

où la somme s'étend a priori sur tous les modes (on a négligé ici toutes les possibilités de peuplement non-résonnant d'états du système comportant plusieurs photons). L'équation de Schrödinger s'écrit alors :

$$i\hbar\frac{d\gamma_0}{dt} = \hbar\omega_0\gamma_0 + \sum_l V_l\gamma_l \tag{4.9}$$

$$i\hbar\frac{d\gamma_l}{dt} = \hbar\omega_l\gamma_l + \gamma_0 V_l^* \tag{4.10}$$

avec :

$$V_l = \langle b;0|\,\widehat{H'}_{int}\,|a;1_l\rangle = -i\mathcal{E}_l d_{ab}\,(\overrightarrow{\varepsilon_l}.\overrightarrow{e_z}) \tag{4.11}$$

En utilisant la condition initiale :

$$\gamma_0\,(0) = 1 \quad \gamma_e\,(0) = 0$$

la deuxième équation s'intègre formellement et donne :

$$\gamma_l(t) = \frac{V_l^*}{i\hbar}\int_0^t \gamma_0\,(t')\,e^{i\omega_l\left(t'-t\right)}dt' \tag{4.12}$$

Une fois cette valeur insérée dans la première équation, on a une équation intégro-différentielle exacte pour γ_0 :

$$i\hbar\frac{d\gamma_0}{dt} = -i\omega_0\gamma_0 - \sum_l \frac{|V_l|^2}{\hbar^2}\int_0^t e^{i\omega_l(t'-t)}\gamma_0(t')dt' \tag{4.13}$$

Posons maintenant :

$$\gamma_0 = \alpha\,(t)\,e^{-i\omega_0 t} \tag{4.14}$$

et :

$$\mathcal{N}\,(\tau) = \frac{1}{\hbar^2}\sum_l |V_l|^2\,e^{i(\omega_0-\omega_l)\tau} \tag{4.15}$$

L'équation précédente s'écrit alors :

$$\frac{d}{dt}\alpha\left(t\right) = -\int_0^t \mathcal{N}\left(\tau\right)\alpha\left(t-\tau\right)d\tau \qquad (\tau = t - t') \tag{4.16}$$

La dérivée de α à l'instant t dépend des valeurs de α antérieures, sur un intervalle temporel égal à la largeur de la fonction $\mathcal{N}(\tau)$. On qualifie donc $\mathcal{N}(\tau)$ de *fonction de mémoire*. Son expression est :

$$\mathcal{N}(\tau) = \frac{d_{ab}^2}{\hbar^2}\left[\sum_l \left(\overrightarrow{\varepsilon_l}.\overrightarrow{e_z}\right)^2 \mathcal{E}_l^2 e^{-i\omega_l\tau}\right] e^{i\omega_0\tau} = \frac{d_{ab}^2}{\hbar^2}G(\tau)e^{i\omega_0\tau} \tag{4.17}$$

où

$$G(\tau) = \langle 0|\left(E_z^{(+)}\left(t\right)\right)\left(E_z^{(+)}\left(t-\tau\right)\right)^+|0\rangle$$

$G(\tau)$ est la *fonction d'autocorrélation des fluctuations de la composante selon Oz du champ dans le vide*. On retrouve que c'est bien la dynamique des fluctuations du vide qui est responsable de l'émission spontanée.

Lorsque $\tau = 0$ toutes les exponentielles valent 1 et s'ajoutent, alors que pour $\tau \neq 0$ on a un brouillage rapide des oscillations si $\omega_0 \neq \omega_l$. $\mathcal{N}(\tau)$ tend donc vers zéro si τ est supérieur au temps de corrélation des fluctuations du vide. Ce temps est très court, de l'ordre de quelques périodes optiques. Donc si t est grand devant ce temps de corrélation (quelques femtosecondes), et en supposant que α varie peu sur ce temps de corrélation, on peut écrire :

$$\frac{d}{dt}\alpha(t) \approx -\left[\int_0^t \mathcal{N}(\tau)d\tau\right]\alpha\left(t\right) \approx -\left[\int_0^{+\infty} \mathcal{N}(\tau)d\tau\right]\alpha(t) \tag{4.18}$$

puisque $\mathcal{N}(\tau)$ est pratiquement nul entre t et l'infini. En posant :

$$\int_0^{+\infty} \mathcal{N}(\tau)d\tau = \frac{\Gamma}{2} + i\delta\omega \tag{4.19}$$

on obtient l'expression suivante des coefficients $\gamma_0(t)$ et $\gamma_l(t)$:

$$\gamma_0(t) = e^{-\frac{\Gamma}{2}t}e^{-i(\omega_0+\delta\omega)t} \tag{4.20}$$

$$\gamma_l(t) = \frac{V_l^\star}{i\hbar}\frac{1-e^{-\Gamma t/2}e^{i(\omega_l-\omega_0-\delta\omega)t}}{\frac{\Gamma}{2}-i\left(\omega_l-\omega_0-\delta\omega\right)}e^{-i\omega_l t} \tag{4.21}$$

On a donc bien trouvé une expression pour la fonction d'onde du système, valable, à la différence de l'approche perturbative, même aux temps longs.

2.2 Caractéristiques de la fonction d'onde du système

- La fonction d'onde n'est pas factorisable en général en une fonction d'onde atomique et un état du champ. Si on mesure grâce à un photodétecteur la présence d'un photon dans un mode l donné, l'état du système est projeté par la mesure sur l'état $|a;1_l\rangle$. On sait alors *avec certitude* que l'atome est dans l'état inférieur : il y a *corrélation quantique totale entre l'atome et le champ.*

- La probabilité de trouver l'atome dans l'état b s'écrit :

$$P_b(t) = |\gamma_0(t)|^2 = e^{-\Gamma t}$$

On obtient bien une décroissance exponentielle de la probabilité de trouver l'atome dans l'état excité, avec un temps moyen de décroissance égal à Γ^{-1}.

- Le coefficient de la fonction d'onde sur l'état excité oscille en $e^{-i(\omega_0+\delta\omega)t}$, comme si l'énergie de l'atome était :

$$\overline{E}_b = \hbar\left(\omega_0 + \delta\omega\right) \tag{4.22}$$

La déstabilisation de l'état excité de l'atome liée à l'émission spontanée s'accompagne d'un déplacement de son énergie : c'est le Lamb-shift qui a été mentionné dans le chapitre précédent.

- Aux temps longs ($t \gg \frac{1}{\Gamma}$) $\gamma_0(t) = 0$ et $\gamma_1(t) \neq 0$. L'état du système est une superposition d'états $|a;1_l\rangle$: il est donc, comme dans l'état initial, factorisable en une partie atomique et une partie de champ :

$$\begin{aligned} |\Psi\left(t\right)\rangle &= |a\rangle \otimes |\psi_R\rangle \\ |\psi_R\rangle &= \sum_l \frac{V_l^*}{i\hbar} \frac{e^{-i\omega_l t}}{\frac{\Gamma}{2} - i\left(\omega_l - \omega_0 - \delta\omega\right)} |1_l\rangle \end{aligned} \tag{4.23}$$

On a $\widehat{N}\,|\psi_R\rangle = |\psi_R\rangle$: l'état du rayonnement $|\psi_R\rangle$ est un état propre du nombre de photons avec la valeur propre 1. On peut donc le qualifier d'*état à un photon.* Son expression (4.23) semble lui conférer un aspect fortement multimode. En fait il n'en est rien : on peut en effet changer de base de modes, et utiliser le mode dont la dépendance spatio-temporelle $\mathbf{v}_1(\mathbf{r},t)$ est $\mathbf{v}_1(\mathbf{r},t) = \langle 0|\,\hat{\vec{E}}^{(+)}(\mathbf{r})\,|\psi_R(t)\rangle$. On montre alors facilement que l'état $|\psi_R(t)\rangle$ n'est autre que l'état à un photon dans ce mode, qu'on peut qualifier de mode de l'émission spontanée. D'autre part $\mathbf{v}_1(\mathbf{r},t)$ permet d'accéder à la

probabilité de photodétection du photon et peut être considéré comme la "fonction d'onde" du photon spontané.

L'émission spontanée d'un atome unique est le moyen le plus simple de créer un état à un photon. Pour avoir un atome unique, on peut utiliser un jet atomique très dilué, ou bien isoler un atome ou un ion unique dans un piège. L'inconvénient de cette technique est que cet état n'existe que pour $t \gg \Gamma^{-1}$. Il faut donc "attendre" un temps long après l'excitation de l'atome pour être sûr d'avoir un état à un photon : on obtient ainsi une source peu intense de photons uniques.

- La probabilité de trouver le photon dans le mode l s'écrit :

$$P(1_l) = \frac{|V_l|^2}{\hbar^2} \frac{1}{\frac{\Gamma^2}{4} + (\omega_l - \omega_0 - \delta\omega)^2}$$

Elle est importante uniquement dans une bande de pulsations de largeur Γ autour de $E_b + \delta\omega$. Cette propriété est une nouvelle preuve que l'énergie du niveau b est déplacée en $\overline{E}_b = E_b + \delta\omega$, et que le niveau acquiert du fait de l'émission spontanée une largeur Γ liée à sa durée de vie finie. Cette probabilité est enfin proportionnelle à $(\overrightarrow{\varepsilon}_l.\overrightarrow{\varepsilon}_z)^2$, qui varie selon l'angle d'émission : on obtient ainsi le diagramme angulaire de l'émission spontanée.

- L'apparition dans la solution d'exponentielles décroissantes et non plus seulement oscillantes pose le problème de l'*irréversibilité* d'un tel processus, pourtant déduit de l'équation de Schrödinger dont on sait qu'elle décrit des phénomènes réversibles. En fait, malgré les apparences, le processus d'émission spontanée est réversible : si on part à $t = 0$ du système dans l'état $\Psi^*(T_1)$ où $\Psi(t)$ est la solution complète exacte de Schrödinger, alors il est facile de voir qu'on se retrouve dans l'état $|b; 0\rangle$ après un laps T_1. L'évolution inverse de celle de la désexcitation d'un niveau atomique excité en présence du vide est donc possible dans le cadre de cette approche. Néanmoins, cet état initial est *difficile à produire*, car il faut créer un état compliqué avec les bons facteurs de phase pour que l'évolution aboutisse exactement à l'état excité. Cet état est donc moins fréquemment rencontré, *moins "probable"*, que l'état $|b; 0\rangle$. On voit que, comme en thermodynamique statistique, l'irréversibilité est encore une fois liée à une question de probabilité.

2.3 Valeurs de Γ et $\delta\omega$

On a vu que :

$$\frac{\Gamma}{2} + i\delta\omega = \frac{1}{\hbar^2}\sum_l \int_0^{+\infty} |V_l|^2 e^{i(\omega_0-\omega_l)\tau} d\tau \tag{4.24}$$

On utilise la relation :

$$\int_0^{\infty} e^{i\omega t} = \pi\delta(t) + iPP\left(\frac{1}{\omega}\right)$$

où PP est la partie principale.

- Pour la partie réelle de cette expression, on a :

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar^2}\sum_l \delta\left(\omega_0-\omega_l\right)|V_l|^2 = \frac{2\pi}{\hbar^2}\int \rho\left(E\right) d\left(\hbar\omega_l\right)\delta\left(\omega_0-\omega_l\right)\left|V_l^2\right|$$

où $\rho\left(E\right)$ est la densité d'états. On a finalement :

$$\Gamma = \frac{2\pi}{\hbar}\rho\left(E=\hbar\omega_0\right)|V_l|^2$$

On retrouve l'expression de Γ_{sp} obtenue dans le cadre de la théorie perturbative du paragraphe précédent. On raccorde donc bien les solutions aux temps courts et aux temps longs que l'on a trouvées successivement. Dans la suite, on utilisera la notation Γ_{sp} pour le taux de désexcitation spontanée aussi bien aux temps courts qu'aux temps longs.

- Pour la partie imaginaire de cette expression, $\delta\omega$ s'écrit :

$$\delta\omega = \frac{1}{\hbar}\int \rho\left(E=\hbar\omega\right) PP\left(\frac{|V_l|^2}{\omega_0-\omega_l}\right) d\omega$$

A la différence de la fonction δ qui intervient dans Γ et qui sélectionne une fréquence précise dans la somme initiale sur les modes, un grand nombre de modes donnent des contributions importantes à la partie principale, y compris des modes très non-résonnants sur la transition considérée, pour lesquels les approximations effectuées ici ne sont pas justifiées. Il faut faire un calcul plus précis sans utiliser l'approximation quasi-résonnante, ni celle des grandes longueurs d'onde et tenir compte des modes relativistes (voir [2] p 304). On obtient une quantité qui diverge logarithmiquement par rapport à la

borne supérieure de l'intégrale sur les fréquences des modes, proportionnelle à $|\Psi_b(\vec{r}=\vec{0})|^2$, où $\Psi_b(\vec{r})$ est la fonction d'onde de l'état excité $|b>$ considéré. Le déplacement d'énergie $\delta\omega$ est donc nul pour les états dont la fonction d'onde s'annule à l'origine, c'est-à-dire pour tous sauf les états S. Si on soustrait de ce déplacement celui obtenu pour un électron en l'absence de potentiel coulombien (procédure de "renormalisation"), on trouve alors une valeur du déplacement du niveau non divergente, et en accord avec les observations expérimentales.

2.4 État initial atomique quelconque

On suppose maintenant que l'état initial atomique est quelconque :

$$|\psi_{at}>=\alpha|a>+\beta|b> \tag{4.25}$$

L'état initial du système atome-champ est donc $|\psi_{at}>\otimes|0>$. Il contient, outre le terme $|b,0>$ dont nous avons calculé ci-dessus l'évolution, un terme en $|a,0>$. Celui-ci n'est couplé à aucun autre par l'hamiltonien d'interaction. Comme il est de plus d'énergie nulle, il reste constant au cours du temps. L'état $|\psi_{a-c}(t)>$ du système atome-champ à tout instant vaut donc :

$$|\psi_{a-c}(t)>=\alpha|a,0>+\beta|\Psi(t)> \tag{4.26}$$

où $|\Psi(t)>$ a été calculé au début de cette section.

2.5 Champ électrique produit

Calculons l'état $\hat{E}^{(+)}(\vec{r})|\psi_{a-c}(\infty)>$. Il est facile de voir qu'il vaut :

$$\vec{\hat{E}}^{(+)}(\vec{r})|\psi_{a-c}(\infty)>=\beta\vec{E}(\vec{r},t)|0>\otimes|a> \tag{4.27}$$

avec :

$$\vec{E}(\vec{r},t)=i\sum_{\ell}\mathcal{E}_\ell e^{i(\vec{k}_\ell\dot{\vec{r}}-\omega_\ell t)}\gamma_\ell(t) \tag{4.28}$$

On en déduit que la valeur moyenne du champ $<\psi_{a-c}(\infty)>|\hat{E}^{(+)}(\vec{r})|\psi_{a-c}(\infty)>$ a la variation spatio-temporelle de $\vec{E}(\vec{r},t)$ et est proportionnelle à la cohérence atomique $\rho_{ba}=\alpha^*\beta$.

Enfin le signal de photodétection $I(\vec{r},t)$, mesuré à l'instant t sur un photodétecteur situé au point $\vec{r}$, l'atome étant à l'origine des coordonnées, vaut, après un calcul long mais simple :

$$\begin{aligned} I(\vec{r},t) &= <\left(\vec{\hat{E}}^{(+)}(\vec{r})\right)^{\dagger}\vec{\hat{E}}^{(+)}(\vec{r})>=\|\hat{E}^{(+)}(\vec{r})|\psi_{a-c}(\infty)>\|^2 \\ &= |\beta|^2(\frac{1}{4\pi\varepsilon_0})^2\frac{k_0^4}{r^2}|d_{ab}|^2\theta(t-\frac{r}{c})e^{-\Gamma_{sp}(t-r/c)} \end{aligned} \tag{4.29}$$

où $\theta(t)$ est la fonction créneau valant 0 pout $t<0$ et 1 pour $t\geq 0$ et $r=|\vec{r}|$. On retrouve ainsi que l'atome excité émet lors de sa désexcitation à partir de l'instant initial un "paquet d'onde exponentiel" qui se propage à la vitesse de la lumière dans toutes les directions.

3. Relaxation de l'atome par émission spontanée

On a pu trouver ici la fonction d'onde totale du système atome+champ pour un état initial quelconque de l'atome, moyennant l'approximation dite de mémoire courte. On peut en déduire l'évolution de la seule partie atomique, en passant à la matrice densité et en faisant la trace partielle sur les variables de champ :

$$\rho_{ii'}=\sum_R \langle i;R|\,\psi_{a-c}(t)><\psi_{a-c}(t)\,|i';R\rangle$$

où R est un état quelconque du rayonnement ($|0\rangle$ ou $|1_l\rangle$). On trouve pour la population du niveau b :

$$\rho_{bb}=|\beta|^2e^{-\Gamma_{sp}t}=\rho_{bb}(0)e^{-\Gamma_{sp}t} \tag{4.30}$$

et pour la cohérence ρ_{ba} :

$$\rho_{ba}=\alpha^*\beta e^{-\Gamma_{sp}t/2}=\rho_{ba}(0)e^{-\Gamma_{sp}t/2} \tag{4.31}$$

L'équation d'évolution des populations et des cohérences sous l'effet de la seule émission spontanée est bien de la forme prévue dans le chapitre précédent qui conduit à une décroissance exponentielle de ces quantités avec les taux de relaxation $\gamma_p=\Gamma_{sp}$ et $\gamma_d=\Gamma_{sp}/2$. On constate donc que *le taux de relaxation par émission spontanée des cohérences est la moitié du taux de relaxation des populations*, comme nous l'avions annoncé dans le chapitre 2.

Si on inclut le déplacement $\delta\omega$ dans l'énergie du niveau b ($\overline{E}_b = \omega_0 + \delta\omega$) et donc dans l'hamiltonien atomique, on peut finalement condenser les trois équations d'évolution pour les éléments de matrice de la matrice densité en une seule équation portant sur la matrice ρ elle-même :

$$\frac{d\rho}{dt} = \frac{1}{i\hbar}\left[\widehat{H}_{at}, \rho\right] - \frac{\Gamma_{sp}}{2}\left(\rho\left|b\right\rangle\left\langle b\right| + \left|b\right\rangle\left\langle b\right|\rho\right) + \Gamma_{sp}\left|a\right\rangle\left\langle b\right|\rho\left|b\right\rangle\left\langle a\right| \tag{4.32}$$

Cette équation, appelée forme de Lindblad de l'"équation pilote", est souvent utilisée dans les problèmes d'optique quantique. On remarquons qu'on peut aussi écrire cette équation sous la forme :

$$\frac{d\rho}{dt} = \frac{1}{i\hbar}\left(\widehat{H}_{at,ef}\rho - \rho\widehat{H}^{\dagger}_{at,ef}\right) + \Gamma_{sp}\left|a\right\rangle\left\langle b\right|\rho\left|b\right\rangle\left\langle a\right|$$

où $\widehat{H}_{at,ef}$ est un hamiltonien atomique effectif, non hermitien, qui s'écrit :

$$\widehat{H}_{at,ef} = \begin{bmatrix} E_b - i\frac{\hbar\Gamma_{sp}}{2} & 0 \\ 0 & E_a \end{bmatrix}$$

L'émission spontanée provoque l'apparition dans l'énergie des niveaux excités de l'atome d'une *partie imaginaire*, qui rend bien compte de son instabilité lorsqu'on l'introduit dans le facteur exponentiel d'évolution temporelle. Remarquons cependant que le phénomène de relaxation n'est pas décrit dans sa totalité par l'apparition de cette partie imaginaire, puisqu'il subsiste dans l'équation d'évolution un terme (dit "de saut quantique") et qui ne peut pas se mettre sous cette forme. Ce terme est indispensable pour rendre compte du remplissage du niveau inférieur de la transition sous l'effet de l'émission spontanée.

5. ATOME A DEUX NIVEAUX ET CHAMP QUASI-RÉSONNANT

Nous allons voir dans les deux chapitres suivants qui concernent deux situations physiques bien définies que pour décrire les différents phénomènes qui se produisent, le traitement le plus approprié n'est pas forcément le plus sophistiqué, mais celui qui permet d'aboutir le plus rapidement possible au résultat. De même qu'en mécanique on utilise à juste titre l'équation de Newton pour décrire le mouvement d'une boule de billard et non pas les équations relativistes, de même on utilisera le modèle de Lorentz pour décrire l'interaction d'un rayonnement de faible intensité, loin de toute résonance avec la matière, et non pas le traitement complètement quantique. Mentionnons toutefois que même lorsqu'elle n'est pas complètement nécessaire et qu'existe en parallèle une approche semi-classique parfaitement valable, l'approche complètement quantique permet d'avoir des images physiques simples de nombreux phénomènes, en termes d'absorption ou d'émission de photons.

Dans le présent chapitre on suppose que le champ incident est de fréquence ω proche d'une fréquence de Bohr ω_0 entre le niveau fondamental a et un niveau excité b. On suppose en outre que les niveaux $|a\rangle$ et$|b\rangle$ ne sont pas dégénérés, et que les autres niveaux sont très éloignés. On peut alors faire l'approximation du système à 2 niveaux.

1. Cas de deux niveaux de longue durée de vie

A cause de l'existence du spin du noyau, le niveau fondamental de beaucoup d'atomes présente une *structure hyperfine*, de l'ordre du GHz. C'est le cas en particulier du niveau fondamental $1S_{\frac{1}{2}}$ de l'hydrogène, qui se décompose en deux sous-niveaux de moment cinétique total $F = 0$ et $F = 1$, distants de $\nu = 1 \quad 420GHz$, ou du niveau fondamental $6S_{\frac{1}{2}}$ du Césium, qui se décompose en deux sous-niveaux $F = 3$ et $F = 4$, distants de $\nu = 9 \quad 192 \quad 631 \quad 770Hz$ (par définition du Hertz ou de la seconde). A cause du

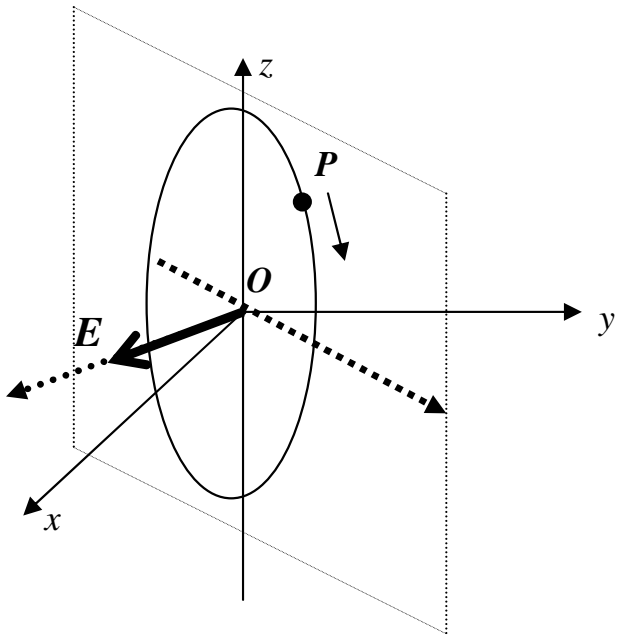

Fig. 5.1: Evolution du point représentatif P sous l'effet d'un champ résonnant

terme en ω^3 dans Γ_{sp}, la durée de vie du niveau $F = 4$ est pratiquement infinie. On peut alors utiliser les résultats du paragraphe 2.1.

1.1 La précession de Rabi du vecteur de Bloch

Lorsqu'on applique à partir de $t = 0$ un champ $Ecos\,(\omega t - \phi)$ sur un système dans l'état $|a\rangle$, le système reste pur au cours de son évolution temporelle parce qu'il n'y a pas de relaxation. Le vecteur de Bloch qui le représente évolue donc sur la sphère de rayon $\frac{1}{2}$. A partir des équations pour la matrice densité atomique introduites au paragraphe (2.1) du chapitre (2), l'évolution du vecteur de Bloch dans le repère tournant à la fréquence ω autour de Oz prend la forme "géométrique" simple suivante :

$$\frac{d\vec{U}}{dt} = \vec{\Omega} \times \vec{U} \tag{5.1}$$

où le vecteur $\vec{\Omega}$ a pour composantes $(\Omega_R cos\phi, \Omega_R sin\phi, -\delta)$. Il s'agit donc d'une *précession* du vecteur de Bloch, à longueur constante, autour du vecteur $\vec{\Omega}$. Dans le cas exactement résonnant, ce vecteur est situé dans le plan xOy. Le point P effectue une rotation d'angle $\Omega_R t$ dans le plan de longitude $\phi - \pi/2$. L'axe de cette rotation est donc constitué par le vecteur représentant dans le plan xOy le champ appliqué en représentation complexe (voir figure 5.1). Cette précession est extrêmement utile : en ajustant la phase ϕ et la durée d'interaction de l'atome avec un champ résonnant, on peut faire passer le système dans n'importe quel état pur (n'importe quel q-bit).

En particulier, si $t = t_1$ tel que $\Omega_R t_1 = \frac{\pi}{2}$, l'atome se trouve porté dans l'état :

$$|\Psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(|a\rangle - ie^{i\phi - i\omega_0 t_1} |b\rangle \right)$$

Il s'agit d'une superposition dans laquelle la cohérence atomique est maximale. En coupant le champ à l'instant t_1 ("impulsion $\frac{\pi}{2}$"), l'atome évolue librement à partir de cet état. Son point représentatif P reste fixe dans le repère tournant. On voit que la *cohérence temporelle* du champ excitateur est capitale. En effet si ϕ est une quantité aléatoire (champ incohérent), le point P se trouvera dans le plan xOy avec un angle ϕ aléatoire. La moyenne statistique donnera alors $\rho_{ba} = 0$. On retrouve ici qualitativement la conclusion du paragraphe 2.3, qui a montré qu'avec une source spectralement large les cohérences sont détruites.

Au bout d'un temps $t_2 = 2t_1$ ($\Omega_R t_2 = \pi$), c'est-à-dire si on impose au système une "impulsion π", l'atome est porté dans l'état :

$$|\Psi\rangle = -i\,|b\rangle\, e^{-i\omega_0 t_2 + i\phi}$$

C'est le moyen le plus efficace pour porter un atome dans son état excité avec une probabilité 1.

Si enfin on impose au système une "impulsion 2π", en arrêtant le champ au bout d'un temps $t_3 = 4t_1$ ($\Omega_R t_3 = 2\pi$), l'atome est porté dans l'état :

$$|\Psi\rangle = -\,|a\rangle\, e^{-i\omega t_3}$$

Il s'agit *au signe près*, de l'état initial. Ce signe peut se révéler important dans certaines applications.

Lorsque le champ n'est pas exactement résonnant, le vecteur $\vec{\Omega}$ autour duquel s'opère la précession n'est plus situé dans le plan xOy. Le vecteur de Bloch décrit maintenant un cône d'axe $\vec{\Omega}$ et contenant la partie positive

Fig. 5.2: séquence de deux impulsions $\frac{\pi}{2}$ séparées par un temps T

de l'axe $0z$. Ce cône ne contient plus la partie négative de cet axe, et le système ne se retrouvera donc jamais au cours de son évolution totalement dans l'état excité. Aux grands désaccords où $\delta \gg \Omega_R$, le vecteur $\vec{\Omega}$ est pratiquement aligné sur l'axe $0z$, et la précession autour de ce vecteur ne modifie pratiquement pas le vecteur de Bloch.

1.2 Franges de Ramsey

En appliquant des suites d'impulsion de champ de durées déterminées, on peut faire évoluer le vecteur d'onde du système de manière voulue. La configuration la plus simple, très souvent utilisée, a été inventé par Ramsey. Elle consiste à appliquer sur l'atome la séquence donnée sur la figure 5.2, formée d'une impulsion $\pi/2$ de durée t_1, puis d'une deuxième impulsion $\pi/2$ un temps T plus tard.

- Supposons tout d'abord que $\omega = \omega_0$. Le point P reste fixe dans le référentiel tournant en l'absence d'interaction. Les précessions autour de $\vec{\Omega}$ du vecteur de Bloch dues aux deux impulsions $\pi/2$ s'ajoutent pour donner une rotation de π. Le système se trouve donc à l'issue des deux impulsions dans l'état excité, comme s'il avait subi une seule impulsion π.

- Supposons maintenant que $\omega \neq \omega_0$, mais que ω reste suffisamment proche de ω_0 pour que les deux impulsions restent très proches d'impulsions $\pi/2$, à des petits termes près. Après la première impulsion, le point P est donc pratiquement dans le plan xOy. Entre la première et la deuxième impulsion,

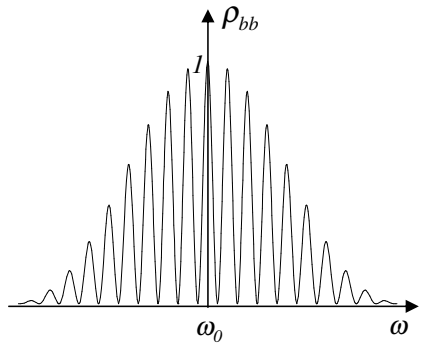

Fig. 5.3: Probabilité de trouver le système dans l'état excité après les deux impulsions de Ramsey

le point P tourne dans ce plan d'un angle $(\omega_0 - \omega)\,T$, quantité qui peut ne pas être négligeable si T est suffisamment long. En particulier :

- si $\delta T \equiv \pi\,(2\pi)$, le point P effectue un demi-tour entre les deux impulsions et se retrouve dans la position symétrique par rapport à l'origine : la deuxième impulsion a alors l'effet opposé de la première, et l'atome se retrouve dans son état initial $|a\rangle$;

- si $\delta T \equiv 0\,(2\pi)$, le point P se retrouve au même endroit avant la deuxième impulsion, et les deux rotations s'ajoutent à nouveau. L'atome est à nouveau transféré dans l'état $|b\rangle$.

Un calcul plus détaillé, tenant compte du fait que les impulsions ne sont plus exactement $\pi/2$, montre que la probabilité de transition vers l'état supérieur à l'issue des deux impulsions en fonction de la pulsation du champ appliqué a l'allure de la figure (5.3). On observe dans la probabilité des oscillations ou "franges", de période $1/T$, donc très faible, qui se superposent à la courbe de résonance large (de largeur $1/t_1$) que l'on aurait avec une seule impulsion π de durée t_1 . Par exemple, si $T = 1s$, la largeur de la structure centrale, centrée en $\omega = \omega_0$ $\Delta\omega$ vaut 1Hz. Ce type de réponse permet de pointer la résonance $\omega = \omega_0$ avec une précision bien meilleure qu'avec une seule interaction. On ne s'étonnera donc pas de voir que cette technique est très utilisée en métrologie des fréquences. C'est en particulier sur ce principe que fonctionnent les horloges atomiques à Césium qui servent à définir la seconde. Ces horloges peuvent utiliser un jet thermique d'atomes de Cé-

sium psaant successivement dans deux régions d'interaction. Leur précision est grandement améliorée lorsqu'on utilise un jet vertical d'atomes refroidis par laser ("fontaine atomique"), qui permet de porter le temps d'interaction T à des valeurs de l'ordre de la seconde. La figure (5.4) donne une courbe expérimentale enregistrée avec l'horloge à Césium à atomes froids du Laboratoire SYRTE de l'Observatoire de Paris (A. Clairon et al Europhysics Letters **16**, 165 (1991)). Les atomes froids sont lancés verticalement vers le haut et retombent sous l'effet de la gravité. Ils passent ainsi deux fois dans une cavité contenant le champ à la fréquence de la transition. La largeur de la frange centrale, égale à 2Hz, permet une stabilité de l'horloge de l'ordre de 10^{-14} sur une seconde. Pour aller au delà vers des temps entre impulsions encore beaucoup plus grands, il faut s'affranchir de l'influence de la gravitation. Une horloge embarquable sur la Station Spatiale Internationale, qui devrait permettre d'atteindre une stabilité de l'ordre de 10^{-16} sur une seconde, est en cours de développement (projet ACES/PHARAO).

1.3 Passage adiabatique rapide

On a vu que pour porter complètement l'atome dans l'état excité, il faut lui appliquer une impulsion π. Cela n'est pas très facile à réaliser expérimentalement, car il faut une amplitude du champ appliqué constante et un temps d'interaction exactement déterminé. Il existe une autre méthode, plus simple à mettre en oeuvre expérimentalement, que nous allons présenter maintenant.

On considère la configuration suivante : dans l'état initial, le système est dans l'état $|a\rangle$ (extrémité du vecteur de Bloch en A) en présence d'un champ électromagnétique de faible intensité et fortement désaccordé, plus précisément tel que $\omega - \omega_0 \gg \Omega_1$. Le vecteur $\mathbf{\Omega}$ est donc lui aussi pratiquement aligné le long de l'axe $0z$: la précession de Rabi du vecteur $\tilde{\mathbf{U}}$ va donc s'effectuer sur un cône d'angle au sommet très petit, et le système ne va donc jamais s'éloigner appréciablement de son état initial.

On fait maintenant varier la fréquence ω du champ appliqué, de manière lente par rapport à la période de précession $2\pi/\Omega_1$: le vecteur de Bloch tourne alors autour d'un vecteur $\mathbf{\Omega}$ variable, et sur un cône faisant à tout instant le même très faible angle avec $\mathbf{\Omega}$ (voir figure 5.5) : il va donc *suivre adiabatiquement* l'évolution de ce vecteur. Considérons alors le cas où la fréquence ω décroît, passe par la valeur de résonance ω_0, pour tendre vers une valeur finale fortement désaccordée, telle que $\omega - \omega_0 \ll -\Omega_1$. Le vecteur de Bloch va suivre l'évolution du vecteur $\mathbf{\Omega}$, et son extrémité va se trouver

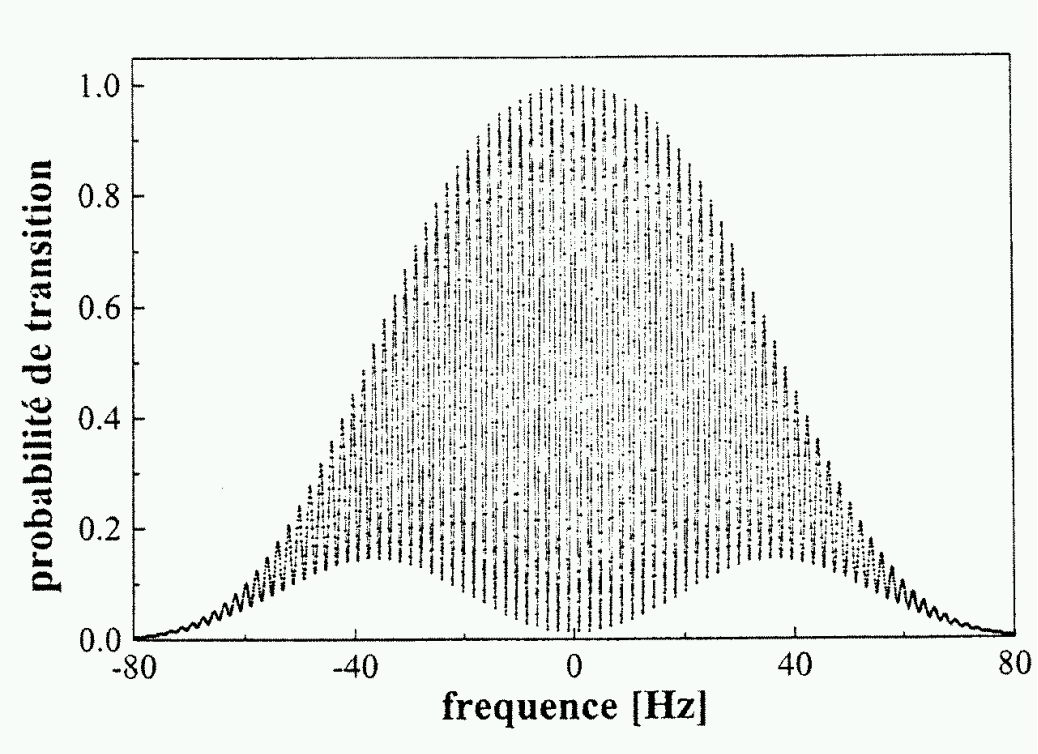

Fig. 5.4: Nombre d'atomes dans le niveau excité en fonction de la fréquence de l'onde appliquée, mesuré avec une horloge atomique à atomes froids

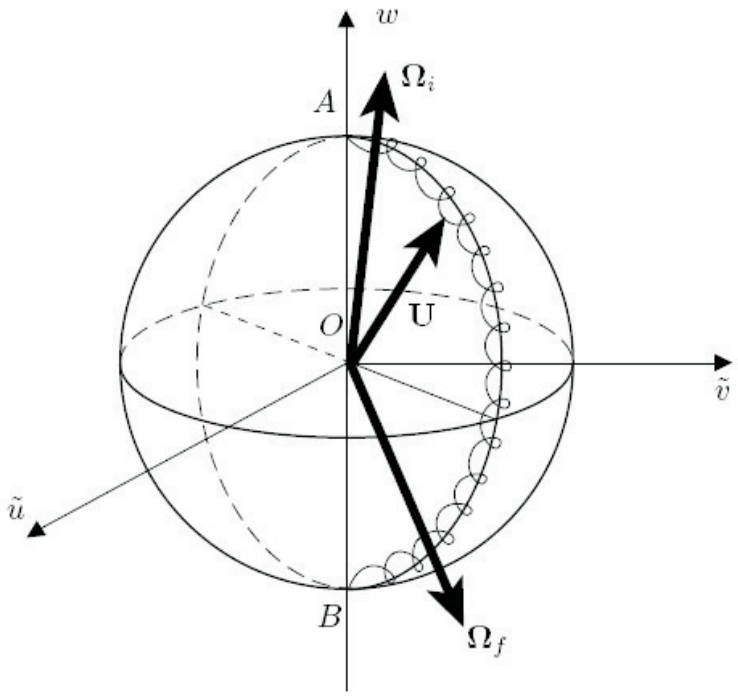

Fig. 5.5: Evolution du vecteur de Bloch lorsqu'on balaie la fréquence de l'onde à travers la fréquence de résonance atomique

finalement au voisinage du point B : il y a donc eu dans ce processus *transfert pratiquement total de l'état* $|a\rangle$ *à l'état* $|a\rangle$. Cette méthode est intéressante par comparaison avec l'application d'une impulsion π par exemple, car elle ne nécessite pas un contrôle aussi précis de la valeur du champ appliqué et du temps d'interaction : il suffit de balayer lentement la fréquence du champ appliqué à travers la valeur de résonance.

1.4 Echos de photons

Il s'agit d'une méthode inventée par E. Hahn dans le cas de la résonance magnétique et qui a été ensuite étendue au domaine optique [1]. Elle s'applique lorsqu'on s'intéresse à un *ensemble inhomogène d'atomes*, qui ont des fréquences de résonance différentes les uns des autres. Ces fréquences ω_0 se répartissent sur une bande centrée en $\overline{\omega}_0$ et de largeur Δ_0, appelée largeur inhomogène. Une telle situation se rencontre fréquemment : dans les solides par exemple, où les atomes situés en des sites cristallins différents ont un environnement différent qui provoque des déplacements différents de la fréquence de transition, ou bien dans les vapeurs atomiques, où les atomes ont des vitesses de déplacement différentes, qui induisent des déplacements Doppler différents de la transition vu par un observateur au repos. Δ_0 est souvent bien supérieur à la largeur naturelle Γ_D de la transition et gêne l'observation des phénomènes atomiques individuels. Par exemple, la courbe d'absorption de l'ensemble des atomes est sensiblement élargie par ce phénomène. Nous verrons un peu plus loin dans ce chapitre comment, grâce à la méthode dite d'"absorption saturée", on peut faire de la spectroscopie de grande précision même en présence de cet élargissement "parasite".

La séquence des impulsions utilisée consiste en une impulsion initiale $\pi/2$ suivie au bout d'un temps t_1 d'une impulsion π, les atomes évoluant librement dans l'intervalle. Nous supposons que le champ appliqué a une fréquence ω égale à la fréquence atomique centrale $\overline{\omega}_0$, et nous nous intéressons à l'évolution du vecteur de Bloch représentant un atome, initialement dans l'état $|a\rangle$ dont la fréquence de Bohr vaut $\omega_0 \simeq \overline{\omega}_0$. Plaçons nous dans le référentiel tournant à la fréquence du champ $\overline{\omega}_0$ (figure 5.6) : la première impulsion a pour effet de porter le vecteur du point A en un point proche de C (exactement en ce point si $\omega_0 = \overline{\omega}_0$). Pendant la période sans champ, le vecteur évolue librement et tourne autour de Oz d'un angle $\omega_0 t_1$ dans le référentiel

1. N. Kurnit, I. Abella, S. Hartmann, Phys. Rev. **141**, 391 (1966).

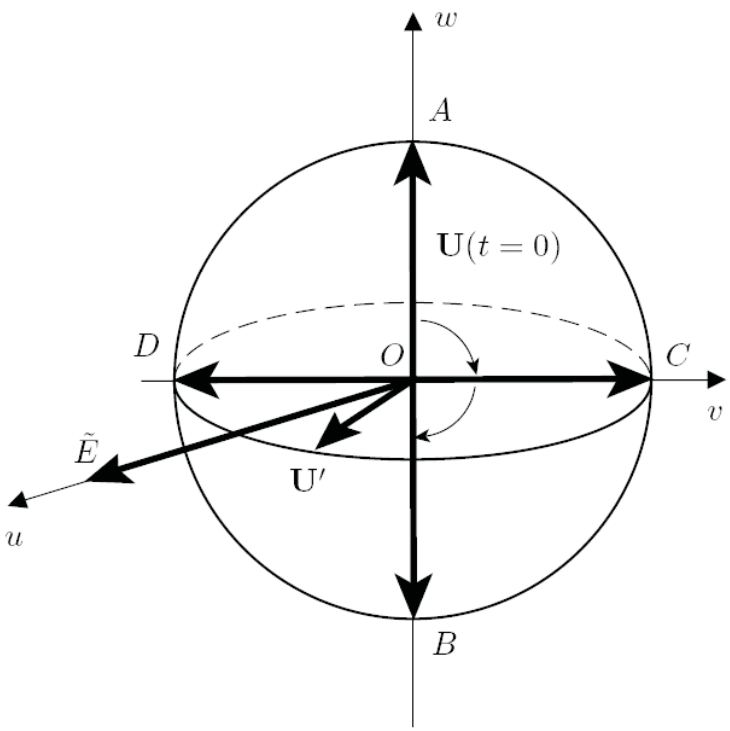

Fig. 5.6: Echo de photons

fixe, donc d'un angle ϕ valant

$$\phi = (\omega_0 - \overline{\omega}_0)t_1 \tag{5.2}$$

dans le référentiel tournant considéré. Ces angles sont différents pour les différents atomes, et si on se place dans la situation où $\Delta_0 t_1 \gg 1$, les différents vecteurs de Bloch à l'instant t_1 se répartissent de manière uniforme dans le plan xOy : le vecteur polarisation $\mathbf{P}$ obtenu par moyenne des dipôles électriques sur l'ensemble des atomes, sera donc nul, et le milieu ne rayonne donc aucun champ.

En fait, chaque atome a bien une cohérence, donc un dipôle, mais qui est masqué par l'effet de moyenne sur l'ensemble inhomogène. C'est la deuxième impulsion qui va permettre de faire resurgir ces dipôles. En effet, celle-ci est une impulsion π qui fait faire un demi-tour au vecteur de Bloch autour de l'axe Ox. Juste après l'impulsion, celui-ci se trouve encore dans le plan xOy, et fait un angle $-\phi$ avec l'axe Ox. Il évolue librement ensuite, comme

pendant la première période sans champ. Au bout d'un temps t_2 suivant la deuxième impulsion, il aura tourné d'un angle total ϕ' égal à

$$\phi' = -\phi + (\omega_0 - \overline{\omega}_0)t_2 \tag{5.3}$$

On voit que cet angle est nul lorsque $t_2 = t_1$, et cela quelle que soit la fréquence de résonance de l'atome considéré : à cet instant, tous les dipôles atomiques individuels pointent dans la direction Ox. Leur moyenne n'est plus nulle, et il y a apparition transitoire d'une polarisation macroscopique $\mathbf{P}$ dans le milieu, qui sert de terme source aux équations de Maxwell et provoque l'apparition d'une impulsion de champ rayonné. C'est cette impulsion qui est qualifiée d'"écho" de photon, puisqu'elle apparaît au bout d'un temps égal au temps séparant les deux premières impulsions. En fait, les processus de relaxation de la cohérence atomique entraînent une réduction de l'intensité de l'écho lorsque t_1 est de plus en plus grand. La mesure de cette diminution est une méthode très utilisée pour remonter au taux de relaxation de la cohérence.

2. Interaction d'un atome avec une impulsion lumineuse

Considérons maintenant le cas où le champ excitateur est une impulsion lumineuse de durée τ grande devant la période optique mais très petite devant les temps de relaxation de l'atome. On pourra alors considérer que pendant l'interaction l'émission spontanée est négligeable, ce qui simplifie considérablement le problème.

2.1 Evolution du vecteur de Bloch dans une impulsion de champ résonnant : théorème de l'aire

On écrit l'amplitude du champ incident, supposé résonnant avec la transition atomique, sous la forme :

$$E(t) = \mathcal{R}e(\tilde{E}_0(t)e^{-i\omega_0 t} \tag{5.4}$$

$\mathcal{R}e(\tilde{E}_0(t)$ est l'amplitude de l'oscillation, qui a la forme d'une impulsion et qui varie peu à l'échelle de la période optique. Le spectre de Fourier de l'impulsion est de largeur $1/\tau$ autour de ω_0. On peut dans ces conditions faire l'approximation séculaire pour chacune de ses composantes de Fourier. Il en résulte que l'équation d'évolution du vecteur de Bloch dans le référentiel

tournant est très proche que celle pour un champ d'amplitude constante (équation (5.1)) :

$$\frac{d\vec{U}}{dt} = \vec{\Omega}(t) \times \vec{U} \tag{5.5}$$

où $\vec{\Omega}(t)$ est le vecteur "rotation instantanée", situé dans le plan xOy puisqu'on est dans le cas résonnant, représentant le nombre complexe $\Omega(t) = -d_{ab}\tilde{E}_0(t)/\hbar$.

On suppose qu'à $t = -\infty$, c'est-à-dire avant l'impulsion, l'atome est dans l'état fondamental, et que le champ appliqué est pour simplifier constamment réel. Le vecteur de Bloch est alors de longueur 1/2 et son évolution se fait à tout instant dans le plan yOz. On appellera $\theta(t)$ l'angle de ce vecteur avec la direction OA. L'équation de précession (5.5) du vecteur de Bloch s'écrit alors :

$$\frac{d\theta}{dt} = \Omega(t) \tag{5.6}$$

On peut alors calculer simplement l'angle de rotation total θ_{tot} du vecteur de Bloch à $t = +\infty$, c'est-à-dire après le passage de l'impulsion :

$$\theta_{tot} = \int_{-\infty}^{+\infty} dt'\Omega(t') = -\frac{d_{ab}}{\hbar}\int_{-\infty}^{+\infty} dt'\tilde{E}_0(t') \tag{5.7}$$

La quantité intégrée est appelée "aire de l'impulsion". Elle détermine complètement l'état du système après le passage de l'impulsion (mais avant que l'émission spontanée ait eu le temps d'opérer).

2.2 Propagation d'une impulsion dans un ensemble dilué d'atomes à deux niveaux résonnants

Nous allons maintenant déterminer comment l'impulsion lumineuse est modifiée lorsqu'elle se propage dans un gaz dilué d'atomes à deux niveaux identiques de densité $\mathcal{N}$. Nous utilisons pour cela les équations de Maxwell-Bloch introduites dans le paragraphe (2.3). La propagation a lieu le long de l'axe Oz est l'on néglige pour simplifier la variation du champ dans le plan xOy perpendiculaire à la propagation. On écrit le champ complexe sous la forme :

$$E(z,t) = \mathcal{R}e(\tilde{E}(z,t)e^{i(kz-\omega t)}) \tag{5.8}$$

et l'on fait l'approximation de l'enveloppe lentement variable (2.65). On a montré plus haut que dans ces conditions l'équation de propagation de l'enveloppe s'écrivait (équation 2.68) :

$$\frac{\partial \tilde{E}}{\partial z} + \frac{1}{c}\frac{\partial \tilde{E}}{\partial t} = \frac{i\omega \mathcal{N} d_{ab}}{\varepsilon_0 c}\tilde{\rho}_{ba} \tag{5.9}$$

L'état des atomes peut alors être décrit par l'angle $\theta(z,t)$ de leur vecteur de Bloch avec la verticale qui dépend maintenant de la position de l'atome dans le milieu. Cet angle obéit à l'équation d'évolution temporelle (5.6), ce qui entraîne :

$$\frac{\partial^2 \theta}{\partial z \partial t} + \frac{1}{c}\frac{\partial^2 \theta}{\partial t^2} = -\frac{i\omega \mathcal{N} d_{ab}^2}{\varepsilon_0 \hbar}\tilde{\rho}_{ba} \tag{5.10}$$

Dans le cas d'un champ constamment réel, $\tilde{\rho}_{ba}$ est lié à l'angle θ par $\tilde{\rho}_{ba} = -i\sin\theta/2$, d'où finalement :

$$\frac{\partial^2 \theta}{\partial z \partial t} + \frac{1}{c}\frac{\partial^2 \theta}{\partial t^2} = -\mu \sin\theta \tag{5.11}$$

avec $\mu = \omega \mathcal{N} d_{ab}^2/2\varepsilon_0\hbar$. L'équation est encore plus simple si l'on utilise la variable $\tau = t - z/c$:

$$\frac{\partial^2 \theta}{\partial z \partial \tau} = -\mu \sin\theta \tag{5.12}$$

Il s'agit de l'équation dite de *Sine - Gordon*. Elle possède en particulier une solution dite *soliton* dont la forme est invariante au cours de la propagation : pour une telle impulsion, pourtant résonnante et donc en interaction maximale avec l'onde, *le milieu est complètement transparent*. Cette solution s'écrit pour $\Omega(t,z) = -d_{ab}\tilde{E}/\hbar$:

$$\Omega(t,z) = 2\left(\tau_p \cosh\frac{t - z/v_p}{\tau_p}\right)^{-1} \tag{5.13}$$

Il s'agit d'une impulsion dont la durée τ_p est un paramètre libre et qui a la forme d'une cosécante hyperbolique se propageant sans déformation à la vitesse v_p donnée par :

$$v_p = \frac{c}{1 + 2\mu c \tau_p^2} \tag{5.14}$$

d'autant plus faible que l'impulsion est longue (et de faible intensité). Il est facile de voir que son aire θ_{tot}, donnée par (5.7) vaut 2π quel que soit τ_p . On

comprend alors l'origine physique de la transparence : lorsque"il est soumis à une telle impulsion, le vecteur de Bloch de chaque atome effectue un tour complet et l'atome se retrouve dans son état initial. Il n'y a donc aucun transfert d'énergie de la lumière vers le milieu atomique. Ce phénomène est qualifié de *transparence auto-induite*.

3. Cas d'un niveau excité de courte durée de vie

Considérons maintenant une transition optique dans un atome qui relie le niveau fondamental à un niveau électronique excité. Par exemple, dans le cas de la transition $3S \to 3P$ du sodium, de longueur d'onde $\lambda = 589nm$, la durée de vie du niveau excité T_{sp} vaut $16ns$ ($\Gamma_{sp} \approx 60MHz$). Pour la transition $6S \to 6P$ du Césium ($\lambda = 852nm$), T_{sp} vaut $32ns$ ($\Gamma_{sp} \approx 30MHz$). On pourra négliger l'émission spontanée uniquement pour des phénomènes de durée courte devant T_{sp}, donc uniquement dans le cas d'impulsions ultra-courtes. Pour des temps plus longs, il faut utiliser les équations de Bloch du chapitre 2.

3.1 Caractéristiques du régime stationnaire

L'atome obéit donc aux équations de Bloch que nous avons introduites au paragraphe 2.2.3. Le vecteur de Bloch qui le décrit a maintenant une double évolution : la précession autour du vecteur $\vec{\Omega}$ et la relaxation qui tend a diminuer graduellement les composantes verticales et transverses du vecteur au cours du temps. L'atome atteint aux temps longs ($t \gg T_{sp}$) un *régime stationnaire* caractérisé par le dipôle suivant :

$$\widetilde{D} = \frac{\omega_0 - \omega + i\gamma_d}{\gamma_d^2 + (\omega_0 - \omega)^2} \frac{d^2 E}{\hbar} (N_a - N_b)$$

La puissance transférée du champ à l'atome, P_{abs}, est l'opposée de celle que nous avons calculée au chapitre 1. Elle vaut :

$$P_{abs} = \frac{\omega E}{2} \, Im\widetilde{D} = \frac{\omega d^2 E^2}{2\hbar} (N_a - N_b) \frac{\gamma_d}{(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma_d^2} \tag{5.15}$$

P_{abs} est donc négatif si $N_a > N_b$, et positif si $N_a < N_b$. Il n'y a d'amplification de l'onde lumineuse possible, dans le cadre de ce modèle, que s'il y a *inversion*

de population. Les équations de Bloch fournissent l'expression suivante de la différence des populations dans le régime stationnaire :

$$N_a - N_b = \frac{(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma_d^2}{(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma_d^2 + \frac{\gamma_d}{\gamma_P}\Omega_R^2} \tag{5.16}$$

où $\Omega_R = \frac{dE}{\hbar}$ est la fréquence de Rabi du système en l'absence d'émission spontanée. On voit sur cette expression que $N_a - N_b$ est toujours positif. Il n'y a donc pas d'amplification possible dans un système à deux niveaux. Il en faut 3 ou 4 pour parvenir à une inversion de population. On trouvera des descriptions détaillées des processus d'inversion de population dans les cours lasers (par exemple la référence 2).

On constate d'autre part que, si l'intensité du champ tend vers l'infini, $N_a - N_b$ tend vers zéro : il y a égalisation des populations à $\frac{1}{2}$, les processus d'absorption et d'émission stimulée se neutralisant réciproquement.

La puissance absorbée par l'atome sur le champ s'écrit donc :

$$\begin{aligned} P_{abs} &= \hbar\omega \frac{\Omega_R^2}{2} \frac{\gamma_d}{(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma_d^2 + \frac{\gamma_d}{\gamma_P}\Omega_R^2} \\ &= \hbar\omega \frac{\Omega_R^2}{2} \frac{\gamma_d}{(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma_d^2 (1 + s)} \end{aligned}$$

où $s = \frac{I}{I_{sat}}$ est le *paramètre de saturation*, $I = \frac{1}{2}\varepsilon_0 E^2 c$ est le flux incident du champ (en W/m^2), et

$$I_{sat} = \frac{\varepsilon_0 c \hbar \gamma_p \gamma_d}{2d^2}$$

est l'*intensité de saturation* de la transition. Si l'émission spontanée est la seule cause de relaxation $\gamma_d = \frac{\gamma_p}{2} = \frac{\Gamma_{sp}}{2}$, où Γ_{sp} a été calculé dans le chapitre précédent. On trouve alors :

$$I_{sat,resonant} = \frac{1}{6\pi} \frac{\hbar\omega_0 \Gamma_{sp}}{\lambda^2}$$

C'est, à un facteur géométrique proche de un près, *le flux lumineux correspondant au passage d'un photon pendant la durée de vie de l'état excité à travers une surface égale au carré de la longueur d'onde*. Dans le cas du Césium, I_{sat} vaut approximativement $2mW/cm^2$, ce qui est un flux facilement accessible pour un laser, même très peu intense. Par contre, il faut que cette puissance

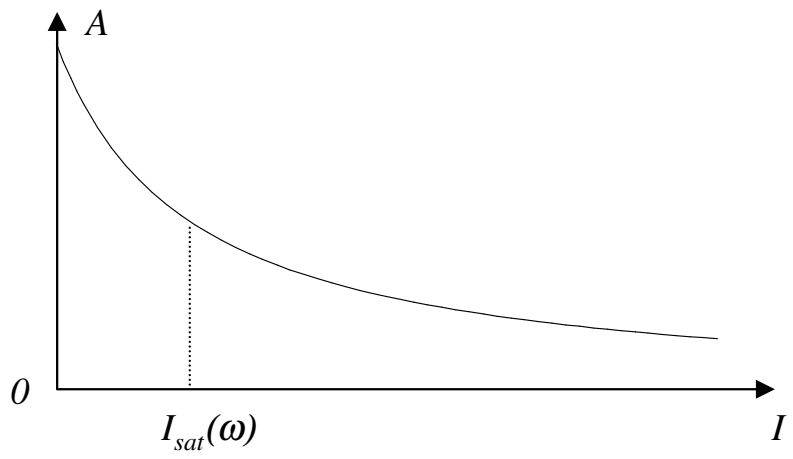

Fig. 5.7: coefficient d'absorption A d'un atome en fonction de l'intensité I du champ incident

soit fournie à l'atome à une fréquence exactement égale à sa fréquence de résonance. Il faut donc utiliser un *laser accordable* qui permette d'ajuster avec précision la fréquence du champ à celle de l'atome. Lorsque la source lumineuse est loin de résonance ($\delta \gg \gamma_d$), le flux lumineux de saturation est beaucoup plus grand. Il est multiplié par le facteur $1 + (\omega - \omega_0)^2/\gamma_d^2$.

La dépendance en I du coefficient d'absorption A de l'atome, c'est-à-dire du rapport $\frac{P_{abs}}{I}$ est donnée sur la figure (5.7). A a une valeur non nulle en champ incident faible, et tend vers zéro si I tend vers l'infini : le système devient alors *pratiquement transparent* pour l'onde incidente, parce que émission stimulée et absorption s'équilibrent dans le milieu atomique. Cette limite est atteinte dès que $I \gg I_{sat}(\omega) = I_{sat}\left(1 + \left(\frac{\omega_0 - \omega}{\gamma_d}\right)^2\right)$. Ce régime de saturation est donc d'autant plus difficile à atteindre qu'on est loin de résonance.

En fait, lorsque I devient très grand, la puissance absorbée par l'atome tend vers une valeur limite qui vaut :

$$(P_{abs})_{\max} = \hbar\omega \frac{1}{2}\gamma_p \tag{5.17}$$

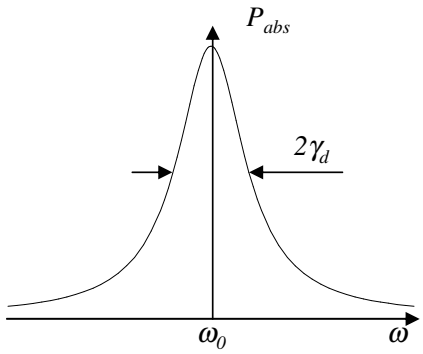

Fig. 5.8: valeur du coefficient d'absorption à puissance incidente fixe en fonction de la fréquence du champ incident

Elle correspond à l'absorption d'un photon toutes les deux durées de vie γ_p^{-1} de l'état excité. C'est en effet la relaxation de la population de l'état excité qui dissipe en définitive l'énergie incidente.

La dépendance en ω de P_{abs} est donnée sur la figure (5.8). C'est une Lorentzienne centrée en ω_0 : à faible puissance lumineuse, l'absorption (ou l'émission stimulée) est importante seulement si $(\omega - \omega_0)^2 \approx \gamma_d^2$, c'est-à-dire dans un intervalle de pulsation dont la largeur à mi-hauteur est égale à $2\gamma_d$ (γ_d/π en unité de fréquence). *La largeur de la transition est donc uniquement liée à l'amortissement du dipôle* (et pas de la population). En outre, la largeur à mi-hauteur croît avec la puissance lumineuse : c'est ce qu'on appelle l'*élargissement radiatif.*

3.2 Absorption saturée

Considérons une assemblée d'atomes ayant des fréquences de résonance ω_0 réparties dans un intervalle $\Delta\omega$ autour d'une fréquence centrale ω_{ab}. On dit que le milieu présente un *élargissement inhomogène.* Cet élargissement est par exemple dû à l'effet Doppler dans le cas d'un gaz : $\omega_0 = \omega_{ab} + kv$, où v est la composante de la vitesse de chaque atome le long de la direction de propagation du champ, dont la distribution obéit à la loi statistique de Maxwell. En général $\Delta\omega \gg \gamma_d$. Dans un milieu solide et dense comme un cristal, les atomes ont des environnements différents et subissent sous l'effet

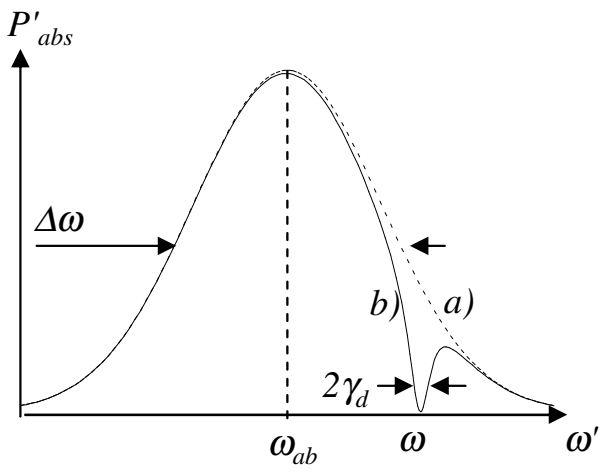

Fig. 5.9: absorption du champ sonde en fonction de sa fréquence : a) (pointillés) en l'absence de champ pompe ; b) (traits pleins)en présence de champ pompe

du champ cristallin des déplacements différents d'un site à un autre par effet Stark.

Ces atomes interagissent avec deux champs : un champ $E\cos\omega t$ *saturant*, et un champ $E'\cos\omega' t$ faible, qui ne perturbe que très faiblement les atomes de l'échantillon. La puissance absorbée sur le champ E', P'_{abs}, vaut alors :

$$P'_{abs} = \int d\omega_0 \mathcal{N}(\omega_0) \frac{\gamma_d}{(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma_d^2} (N_a - N_b)(\omega_0)$$

où $(N_a - N_b)$ est dû à l'effet des deux champs sur les atomes, et où $\mathcal{N}(\omega_0)$ est le nombre d'atomes ayant une fréquence d'absorption égale à ω_0. Puisque $\Delta\omega \gg \gamma_d$, la Lorentzienne est pratiquement une fonction $\delta(\omega - \omega_0)$, et on peut écrire :

$$P'_{abs} \approx P'_0 \mathcal{N}(\omega')(N_a - N_b)(\omega')$$

- En l'absence du champ intense $N_a - N_b \approx 1$, et la courbe de résonance a pour largeur $\Delta\omega$, qui est très grand : la précision des mesures spectroscopiques ainsi effectuées est limitée par la largeur inhomogène du système (voir figure 5.9a)).

- En présence du champ intense, $N_a - N_b \approx 1$ si $\omega_0 \neq \omega$, et on est ramené au cas précédent. En revanche, si $\omega_0 = \omega$ à γ_d près, alors $N_a - N_b \approx 0$,

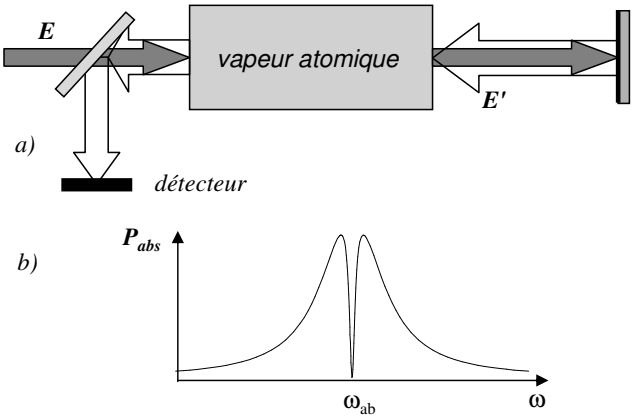

Fig. 5.10: spectroscopie d'absorption saturée sur une vapeur atomique : a) configuration des champs ; b) courbe d'absorption en présence du champ direct saturant et du champ réfléchi faible

donc $P'_{abs} \approx 0$: le champ intense a "creusé un trou" dans la différence des populations $N_a - N_b$, qui a été "sondé" par le champ faible (voir figure (5.9b)). Cette méthode, dite d'absorption saturée, permet de remonter à γ_d, qui n'est plus masqué par $\Delta\omega$.

Plaçons-nous maintenant dans le cas particulier de l'élargissement Doppler. Les deux champs appliqués sont pris de même fréquence ω, mais de directions opposées (voir figure (5.10a)). Ils provoquent donc des effets Doppler opposés.

- Si $\omega \neq \omega_{ab}$, le champ E sature les atomes de vitesse $v = \frac{\omega - \omega_{ab}}{k}$, tandis que le champ E' sonde les atomes de vitesse $v = \frac{\omega'_{ab} - \omega}{k}$, qui ne sont pas perturbés par la présence du champ saturant.

- Si $\omega = \omega_{ab}$, E et E' sont couplés tous deux aux atomes de vitesse nulle pour lequel $N_a = N_b$ à cause du champ saturant E : on trouve au centre de la large résonance due à E' seul un creux centré en $\omega = \omega_{ab}$, de largeur γ_d (voir figure (5.10b)). La "spectroscopie d'absorption saturée" permet donc de mesurer la fréquence d'une transition dans un échantillon gazeux avec une précision limitée par la largeur naturelle Γ_{sp}, et non par la largeur Doppler bien plus grande.

4. Interaction entre un atome à deux niveaux et un mode du champ quantique

On va maintenant passer à la description complètement quantique de l'interaction matière-rayonnement, pour voir les phénomènes nouveaux qui apparaissent. On va se placer ici aussi dans le cas le plus simple : le système à deux niveaux pour l'atome et le mode unique pour le champ.

4.1 Position du problème

Cette situation simple correspond à une situation expérimentale réelle, celle de l'*électrodynamique en cavité*. On utilise une cavité électromagnétique de faibles pertes, qui possède un ensemble discret de *modes résonnants* discrets, de pulsations ω_l. On se place dans le cas où un seul de ces modes est proche de la fréquence de Bohr de la transition atomique ω_0. Le couplage essentiel a donc lieu entre les états atomiques $\{|a\rangle, |b\rangle\}$ et les états du seul mode l, du type $\sum_{n_l} |0...n_l...0\rangle$, où seul le mode l est rempli.

Nous verrons plus loin qu'on peut aussi utiliser les résultats de cette section, mais avec précautions, au cas de l'*interaction entre un atome de longue durée de vie et un laser monomode intense*. En effet, le laser produit un état cohérent de grand nombre moyen de photons dans un mode l donné. Son interaction avec l'atome va se faire avec un élément de matrice $\sqrt{n_l}$ ou $\sqrt{n_l+1}$ dans le mode l, et un élément de matrice de l'ordre de 1 pour les autres modes. Si on néglige l'émission spontanée, les autres modes ne se remplissent pas et on va donc pouvoir se restreindre à l'espace de Hilbert sous-tendu par les vecteurs de base $|i;n\rangle$, avec $i = a, b$, et où $|n\rangle$ désigne un état de Fock du mode l.

4.2 Hamiltonien de Jaynes-Cummings

L'hamiltonien du système restreint à ce sous-espace s'écrit, dans le cas d'un atome immobile à l'origine des coordonnées :

$$\widehat{H} = \widehat{H}_{at} + \widehat{H}_{ray} + \widehat{H}'_{int} \tag{5.18}$$

avec :

$$\widehat{H}_{at} = E_b |b\rangle \langle b| + E_a |a\rangle \langle a| \tag{5.19}$$

$$\widehat{H}_{ray} = \hbar\omega_l \left(\widehat{a}_l^+ \widehat{a}_l + \frac{1}{2}\right) \tag{5.20}$$

$$\widehat{H}'_{int} = -i\mathcal{E}_l \widehat{\overrightarrow{D}}.\overrightarrow{\varepsilon}_l \left(\widehat{a}_l - \widehat{a}_l^+\right) \tag{5.21}$$

On prendra pour simplifier la polarisation du mode considéré parallèle à Oz, et on appellera d_{ab} l'élément de matrice de $\widehat{D_z}$ entre les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$. $\widehat{H}'_{int}$ s'écrit alors :

$$\widehat{H}'_{int} = -i\mathcal{E}_l d_{ab} \left[|a\rangle\langle b| + |b\rangle\langle a|\right] \left[\widehat{a}_l - \widehat{a}_l^+\right] \tag{5.22}$$

Lorsqu'on développe le produit, on trouve quatre termes, qui décrivent quatre processus : ceux où l'atome transite de b à a, et le champ de l'état n à l'état $n-1$ (1), ou $n+1$ (2) ; ceux où l'atome transite de a à b, et le champ de l'état n à l'état $n-1$ (3), ou $n+1$ (4). Si ω_l est proche de ω_0, les processus (1) et (4) sont fortement non résonnants et ont un effet très faible devant ceux induits par les processus quasi-résonnants (2) et (3). On les négligera ici, et on ne gardera donc que deux termes dans l'hamiltonien. D'autre part on prendra comme zéro d'énergie E_a pour les atomes et $\frac{1}{2}\hbar\omega_l$ pour les photons. L'hamiltonien du système, appelé *hamiltonien de Jaynes-Cummings*, s'écrit finalement :

$$\widehat{H}_{JC} = \hbar\omega_0 |b\rangle\langle b| + \hbar\omega_l \widehat{a}_l^+ \widehat{a}_l + i\frac{\hbar\Omega_v}{2}\left[|a\rangle\langle b|\,\widehat{a}_l^+ - |b\rangle\langle a|\,\widehat{a}_l\right] \tag{5.23}$$

où $\hbar\Omega_v = 2\mathcal{E}_l d_{ab}$ est appelé "fréquence de Rabi du vide".

4.3 États et énergies propres du système

Cet hamiltonien agit de la manière suivante sur les états de la base :

$$\widehat{H}_{JC}|a;n\rangle = n\hbar\omega_l |a;n\rangle - i\hbar\Omega_v\sqrt{n}\,|b;n-1\rangle \tag{5.24}$$

$$\widehat{H}_{JC}|b;n-1\rangle = \hbar\left[\omega_0 + (n-1)\,\omega_l\right]|b;n-1\rangle + i\hbar\Omega_v\sqrt{n}\,|a;n\rangle \tag{5.25}$$

On constate que le sous-espace, ou multiplicité, noté $\mathcal{M}_n$, sous-tendu par les vecteurs $\{|a;n\rangle, |b;n-1\rangle\}$, est fermé sous l'action de $\widehat{H}_{JC}$. Pour trouver les éléments propres de cet hamiltonien, il nous suffit donc de le diagonaliser dans chacun de ces sous-espaces, sauf pour $n = 0$ où il est déjà diagonal :

$$\widehat{H}_{JC}|a;0\rangle = 0 \tag{5.26}$$

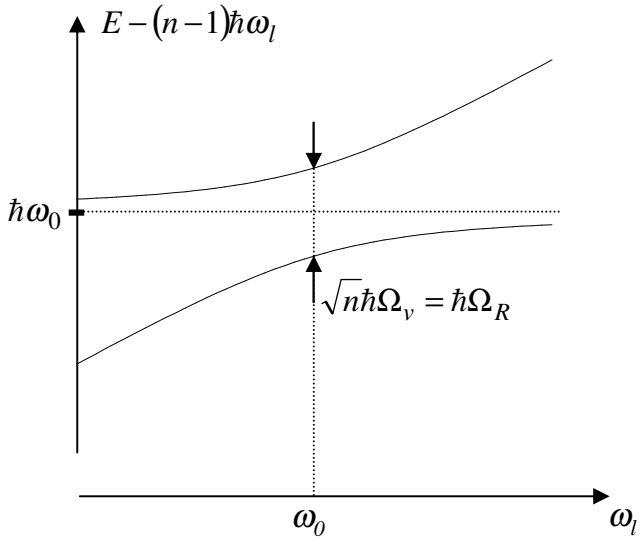

Fig. 5.11: niveaux d'énergie du système atome+champ (une fois le terme $(n-1)\hbar\omega_l$ retiré) en fonction de la fréquence ω_l du champ

$|a;0\rangle$ est l'état propre fondamental du système couplé. Les éléments propres dans $\mathcal{M}_n$ sont faciles à trouver. On appellera $|\Psi_{\pm n}\rangle$ les états propres dans cette multiplicité : $\widehat{H}_{JC}\,|\Psi_{\pm n}\rangle = E_{\pm n}\,|\Psi_{\pm n}\rangle$, avec :

$$E_{\pm n} = \hbar\left(n\omega_l - \frac{\delta}{2} \pm \frac{1}{2}\sqrt{n\Omega_v^2 + \delta^2}\right) \tag{5.27}$$

$$|\Psi_{+n}\rangle = \cos\theta_n\,|a;n\rangle + i\sin\theta_n\,|b;n-1\rangle \tag{5.28}$$

$$|\Psi_{-n}\rangle = i\sin\theta_n\,|a;n\rangle + \cos\theta_n\,|b;n-1\rangle \tag{5.29}$$

et :

$$\delta = \omega_l - \omega_0 \quad \tan 2\theta_n = \frac{-\Omega_v\sqrt{n}}{\delta} \quad 0 \leq \theta_n < \pi/2 \tag{5.30}$$

Niveaux d'énergie

Les niveaux d'énergie pour une valeur de n quelconque sont donnés sur la figure (5.11), dans la région $\delta \ll \omega_0, \omega_l$. On observe une forme hyperbolique des niveaux d'énergie, correspondant à ce qu'on appelle un *anticroisement*

de niveaux. En particulier, à résonance exacte ($\delta = 0$), on a deux niveaux séparés par l'écart énergétique :

$$\Delta E_n = \sqrt{n}\hbar\Omega_v \tag{5.31}$$

Plaçons-nous d'abord dans le cas $n = 1$, qu'on peut réaliser expérimentalement dans une expérience d'électrodynamique en cavité. Plusieurs situations expérimentales on été étudiées : en premier lieu celle d'une cavité résonnante pour les ondes centimétriques interagissant avec un atome de Rydberg, c'est-à-dire un atome porté dans un état très excité de grand nombre quantique principal. Par exemple la transition $n = 30 \to n = 29$ a une fréquence de Bohr de $50GHz$ environ, ce qui correspond bien à une longueur d'onde centimétrique. Le volume de la cavité est alors $V = 1cm^3$, et la taille de l'atome de Rydberg, donc du dipôle atomique, proportionnelle à n^2, est très grande, de l'ordre de $250nm$. $\frac{\Omega_v}{2\pi}$ vaut alors $100kHz$. On a aussi beaucoup étudié le cas d'un atome de Césium, dont la raie de résonance entre le fondamental et le premier niveau excité vaut $\lambda = 0,8\mu m$, situé dans une cavité de type Fabry-Perot de très petite taille $V = 1mm \times (50\mu m)^2$, et une taille d'atome d'environ $0,1nm$. $\frac{\Omega_v}{2\pi}$ vaut alors $3MHZ$. On remarque que $\frac{\Omega_v}{2\pi}$ est d'autant plus petit que V est grand. Pour réduire encore plus V, les chercheurs font appel aux nanotechnologies, qui permettent de réaliser des cavités optiques fonctionnant dans le monde fondamental, donc d'un volume de l'ordre du μm^3.

Lorsque n est grand, on a la même forme d'anticroisement des niveaux d'énergie, mais avec un écart plus grand.

États propres

Les états $|\Psi_{\pm n}\rangle$ ne sont en général pas factorisables :

$$|\Psi_{\pm n}\rangle \neq |\Psi_{at}\rangle \otimes |\Psi_{ray}\rangle \tag{5.32}$$

Ils impliquent l'existence d'une corrélation quantique forte entre l'atome et le champ. Ce sont des "états intriqués". On les appelle aussi états de l"atome habillé" (par les photons du champ quantique).

A résonance exacte, $\delta = 0$, θ_n vaut $\frac{\pi}{4}$, et donc :

$$|\Psi_{+n}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|a;n\rangle + i\,|b;n-1\rangle\right) \tag{5.33}$$

$$|\Psi_{-n}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(i\,|a;n\rangle + |b;n-1\rangle\right) \tag{5.34}$$

Il y a dans ces états intrication maximale entre le champ et l'atome.

Si le désaccord devient très grand par valeurs négatives, alors $\theta_n \to \frac{\pi}{2}$, et $|\Psi_{+n}\rangle$ tend vers $i\,|b; n-1\rangle$. Si le désaccord devient très grand par valeurs positives, $\theta_n \to 0$, et $|\Psi_{+n}\rangle$ tend vers $|a; n\rangle$. Ces états sont factorisés : il y "désintrication" entre l'atome et le champ lorsque les fréquences propres de chaque systèmes sont très éloignées.

4.4 Transition par passage adiabatique

Utilisons maintenant pour interagir avec l'atome dans son état $|a\rangle$ un laser dont on fait varier continûment et lentement le désaccord à résonance δ depuis une valeur positive grande devant $\Omega_v\sqrt{n}$ jusqu'à une valeur négative de module grand devant $\Omega_v\sqrt{n}$. Si on décrit le laser par un état nombre à n photons, l'état initial du système $|a, n\rangle$, est aussi l'état "habillé" $|a, n\rangle \simeq |\psi_{+n}\rangle$ dans la condition initiale de grand désaccord positif. Si la variation de la fréquence est suffisamment lente, le système va suivre adiabatiquement le niveau d'énergie sur lequel il se trouve, et va donc parcourir la branche d'hyperbole inférieure de la figure (6.9) tout en restant dans l'état $|\psi_{+n}\rangle$. L'état final du système dans la situation de grand désaccord positif est donc $|\psi_{+n}\rangle \simeq i|b, n-1\rangle$: l'atome a ainsi transité de son niveau inférieur vers son niveau supérieur.

Dans une situation non idéale, le niveau supérieur a une durée de vie finie, et il est donc nécessaire que la variation de la fréquence de la source soit effectué dans un temps court devant le durée de vie du niveau $|b\rangle$, d'où le nom de *passage adiabatique rapide* donné à cette technique. Il s'agit d'une méthode extrêmement efficace pour transférer un système quantique d'un niveau à un autre avec une probabilité de 100%, car, à la différence de l'impulsion π dans la précession de Rabi, qui nécessite une très bon contrôle de la durée et de l'uniformité de l'intensité de l'impulsion appliquée, elle est très robuste vis à vis d'un manque de contrôle total des conditions de la transition.

4.5 Effet des termes antirésonnants : déplacement de Bloch-Siegert

Pour obtenir l'Hamiltonien de Jaynes-Cummings dont nous venons de déterminer les éléments propres, nous avons négligé une partie de l'hamiltonien d'interaction, plus précisément sa partie antirésonnante :

$$\widehat{H}_{AR} = i\frac{\hbar\Omega_v}{2}\left[-\,|a\rangle\langle b|\,\widehat{a}_l + |b\rangle\langle a|\,\widehat{a}_l^\dagger\right] \tag{5.35}$$

Il est possible de tenir compte de manière perturbative de l'effet de ce terme sur chacune des multiplicités $\mathcal{M}_n$. Il faut pour cela étendre le formalisme habituel de la théorie des perturbations stationnaires du cas d'un niveau unique à celui d'une multiplicité $\mathcal{M}_n$. Cela peut se faire par exemple en utilisant la théorie de l'*hamiltonien effectif*[2], qui montre que pour trouver à l'ordre 2 vis à vis de la perturbation les éléments propres du système, il suffit de trouver les éléments propres d'un hamiltonien effectif $\hat{H}_{eff}$ agissant uniquement dans la multiplicité $\mathcal{M}_n$, et dont les éléments de matrice entre états $|i\rangle$ et $|j\rangle$ de base de $\mathcal{M}_n$ valent :

$$\langle i|\hat{H}_{eff}|j\rangle = \langle i|\hat{H}_{JC}|j\rangle + \sum_k \langle i|\hat{H}_{AR}|k\rangle\langle k|\hat{H}_{AR}|j\rangle \frac{1}{2}\left(\frac{1}{E_i - E_k} + \frac{1}{E_j - E_k}\right) \tag{5.36}$$

où $|k\rangle$ est un état intermédiaire quelconque extérieur à la multiplicité $\mathcal{M}_n$. On retrouve la formule habituelle de la théorie des perturbations au second ordre pour les éléments diagonaux. Pour les éléments non-diagonaux, on voit qu'il suffit de prendre la moyenne des deux dénominateurs d'énergie possibles.

Dans le cas qui nous préoccupe les états $|i\rangle$ et $|j\rangle$ sont les états $|a, n\rangle$ et $|b, n-1\rangle$, et les états intermédiaires $|k\rangle$ sont respectivement $|b, n+1\rangle$ et $|a, n-2\rangle$. On voit alors facilement que les éléments non-diagonaux de l'hamiltonien effectif sont égaux à ceux de l'hamiltonien de Jaynes-Cummings. Les éléments diagonaux, eux, deviennent :

$$\begin{aligned}
\langle a, n|\hat{H}_{eff}|a, n\rangle &= \hbar\left(n\omega_l + \frac{(n+1)\Omega_v^2}{4(\omega_0+\omega_l)}\right) \\
\langle b, n-1|\hat{H}_{eff}|b, n-1\rangle &= \hbar\left(n\omega_l - \delta - \frac{(n-1)\Omega_v^2}{4(\omega_0+\omega_l)}\right)
\end{aligned}$$

La modification des éléments diagonaux conduit à un déplacement global des courbes d'énergie de la figure (6.9). Le centre de la résonance (intersection des asymptotes) est maintenant positionné en :

$$\omega_l = \omega_0 - \frac{(n-1)\Omega_v^2}{4(\omega_0+\omega_l)} - \frac{(n+1)\Omega_v^2}{4(\omega_0+\omega_l)} \simeq \omega_0 - \frac{n\Omega_v^2}{4\omega_0} = \omega_0 - \frac{\Omega_R^2}{4\omega_0} \tag{5.37}$$

L'existence des termes anti-résonnants conduit donc à un *déplacement de la résonance*, appelé *déplacement de Bloch-Siegert*, proportionnel à la puissance lumineuse incidente. Dans le domaine optique, du fait de la présence de

2. Voir C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg interaction photons-atomes p.38.

ω_0 au dénominateur, ce déplacement est généralement négligeable, quoique accessible à des mesures de grande précision. Dans le domaine micro-onde où ω_0 est faible, il peut être très important, et même du même ordre que ω_0 pour des puissances incidentes accessibles. La résonance est alors déportée vers la fréquence nulle. Elle peut même disparaître pour des puissances suffisamment grandes.

4.6 Émission spontanée de l'atome à l'intérieur de la cavité

On suppose qu'à $t = 0$ on met l'atome excité dans une cavité exactement résonnante avec sa transition ($\delta = 0$), et vide de photons. L'état initial du système est donc $|\Psi(0)\rangle = |b; 0\rangle$. Comme cet état n'est pas un état propre du système, il évolue donc dans le temps, tout en restant dans la multiplicité $\mathcal{M}_1 = \{|b; 0\rangle, |a; 1\rangle\}$. Il s'écrit plus précisément sur la base des états propres du système :

$$|\Psi(0)\rangle = \frac{1}{i\sqrt{2}} \left(|\Psi_{+1}\rangle + i\,|\Psi_{-1}\rangle\right) \tag{5.38}$$

On en déduit son expression à tout instant :

$$|\Psi(t)\rangle = \frac{e^{-i\omega_0 t}}{i\sqrt{2}} \left(e^{-i\Omega_v \frac{t}{2}} |\Psi_{+1}\rangle + i e^{i\Omega_v \frac{t}{2}} |\Psi_{-1}\rangle\right) \tag{5.39}$$

$$= e^{-i\omega_0 t} \left(\cos\frac{\Omega_v t}{2} |b; 0\rangle - \sin\frac{\Omega_v t}{2} |a; 1\rangle\right) \tag{5.40}$$

en revenant à la base "naturelle" $|i; n\rangle$. On obtient un comportement analogue à l'oscillation de Rabi semi-classique, mais entre les états $|a; 1\rangle$ et $|b; 0\rangle$, et non pas les états purement atomiques $|a\rangle$ et $|b\rangle$. La probabilité de trouver l'atome en b vaut :

$$P_b(t) = \sum_n \langle b; n\,|\Psi(t)\rangle \langle\Psi(t)|\, b; n\rangle = \cos^2\frac{\Omega_v t}{2} \tag{5.41}$$

On trouve que *cette probabilité a un comportement oscillant* et non pas exponentiel comme dans l'espace libre : la cavité "renvoie" le photon sur l'atome qui le réabsorbe (c'est une sorte de "squash atomique"). On a ainsi des oscillations de Rabi à un photon, appelées souvent oscillations de Rabi du vide.

Si la cavité n'est pas résonnante, on trouve :

$$P_b(t) = 1 - \frac{\Omega_v^2}{\Omega_v^2 + \delta^2} \sin^2\left(\sqrt{\delta^2 + \Omega_v^2}\frac{t}{2}\right) \tag{5.42}$$

P_b reste proche de 1 : l'atome reste essentiellement tout le temps dans l'état excité, et a une probabilité faible de se retrouver dans l'état fondamental.

On voit donc que l'émission spontanée est très profondément modifiée lorsqu'on met l'atome en présence d'une cavité, qu'elle soit résonnante ou non-résonnante. L'émission spontanée apparaît donc non pas comme un propriété intrinsèque de l'atome, mais comme celle de l'ensemble atome-environnement.

4.7 Évolution sous l'effet d'un état nombre

On va maintenant évaluer la manière dont on peut exciter l'atome initialement dans son état fondamental sous l'effet d'un champ présent dans la cavité. Nous traiterons d'abord le cas où le champ est initialement dans un état nombre $|n\rangle$. L'état initial du système est alors :

$$|\Psi(0)\rangle = |a;n\rangle \tag{5.43}$$

Le système va alors évoluer entre les états $|a;n\rangle$ et $|b;n-1\rangle$ de la multiplicité $\mathcal{M}_{n-1}$. Un calcul identique au précédent donne pour $|\Psi(t)\rangle$:

$$|\Psi(t)\rangle = e^{-in\omega_0 t}\left(\cos\frac{\sqrt{n}\Omega_v t}{2}\,|a;n\rangle + \sin\frac{\sqrt{n}\Omega_v t}{2}\,|b;n-1\rangle\right) \tag{5.44}$$

On a maintenant :

$$P_b(t) = \cos^2\frac{\sqrt{n}\Omega_v}{2}t \tag{5.45}$$

On retrouve bien l'oscillation de Rabi pour l'atome, avec la même fréquence d'oscillation, comme nous l'avons montré au début de cette section. On peut ici aussi faire subir au système une impulsion $\frac{\pi}{2}$ $\left(\left(\sqrt{n}\Omega_v t_{\frac{\pi}{2}} = \frac{\pi}{2}\right)\right.$. On atteindra alors l'état :

$$\left|\Psi\left(t_{\frac{\pi}{2}}\right)\right\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}e^{-in\omega_0 t_{\frac{\pi}{2}}}\left(|a;n\rangle + |b;n-1\rangle\right) \tag{5.46}$$

C'est un état intriqué très différent de celui atteint dans le régime semi-classique $|\Psi_{at}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|a\rangle + |b\rangle\right)$. On peut voir en particulier que dans cet état $\left\langle\widehat{E}\right\rangle = 0$ et $\left\langle\widehat{\vec{D}}\right\rangle = 0$, alors que $\left\langle\Psi_{at}\left|\widehat{\vec{D}}\right|\Psi_{at}\right\rangle \neq 0$ dans un champ classique $E\cos\omega t$. Cet état présente de fortes corrélations atome-champ : si l'atome est mesuré dans l'état $|a\rangle$, alors on est sûr que le champ est dans l'état $|n\rangle$. Si l'atome est mesuré dans l'état $|b\rangle$, on est sûr que le champ est dans l'état $|n-1\rangle$. Les états du champ atteints dans les deux cas sont deux états

orthogonaux, donc très différents même pour n très grand. Cette corrélation est non locale : on peut mesurer l'état de l'atome bien après qu'il ait traversé la cavité, et en déduire "à distance" l'état du champ dans cette cavité.

4.8 Évolution sous l'effet d'un état cohérent

Etat cohérent quelconque

Les propriétés de corrélations quantiques constatées dans le paragraphe précédent sont liées à la nature très "non-classique" de l'état nombre. On suppose maintenant que le champ est dans un état plus "habituel", plus précisément :

$$|\Psi(0)\rangle = |a\rangle \otimes |\alpha\rangle \tag{5.47}$$

avec :

$$|\alpha\rangle = \sum_n c_n |n\rangle \qquad c_n = e^{-\frac{|\alpha|^2}{2}} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} \tag{5.48}$$

On a donc $|\Psi(0)\rangle = \sum_n c_n |a;n\rangle$, d'où l'on déduit l'état du système à tout instant, par linéarité de l'équation de Schrödinger :

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_n c_n e^{-in\omega_0 t} \left[\cos\frac{\sqrt{n}\Omega_v t}{2} |a;n\rangle + \sin\frac{\sqrt{n}\Omega_v t}{2} |b;n-1\rangle\right] \tag{5.49}$$

Cet état nous permet de calculer la probabilité de trouver l'atome dans l'état initial $|a\rangle$:

$$P_a(t) = \sum_n |c_n|^2 \cos^2\frac{\sqrt{n}\Omega_v t}{2} \tag{5.50}$$

Cette fonction est représentée sur la figure (5.12). $P_a(t)$ est formé par une superposition d'oscillations de Rabi de fréquences différentes, qui démarrent toutes en phase. Les différentes oscillations se brouillent à des instants ultérieurs, et $P_a(t)$ se rapproche de sa valeur moyenne $\frac{1}{2}$ au bout d'un temps de l'ordre de Ω_v^{-1}. Cependant, comme le nombre de sinusoïdes qui contribuent est fini, les oscillations finissent, après un temps de récurrence, par se remettre approximativement en phase, et $P_a(t)$ reprend des valeurs proches de 1 au bout d'un temps de l'ordre de $|\alpha|\,\Omega_v^{-1}$: c'est le phénomène de *renaissance quantique*. Ce comportement complexe du système, qui n'a pas d'équivalent classique, a été mis en évidence expérimentalement. La figure (5.13) donne un exemple de résultat expérimental obtenu avec différentes valeurs de α, entre 0 et 1,3 sur un atome de Rydberg interagissant avec une cavité micro-onde supraconductrice (M. Brune et al, Phys. Rev. Letters **76**, 1800 (1996)).

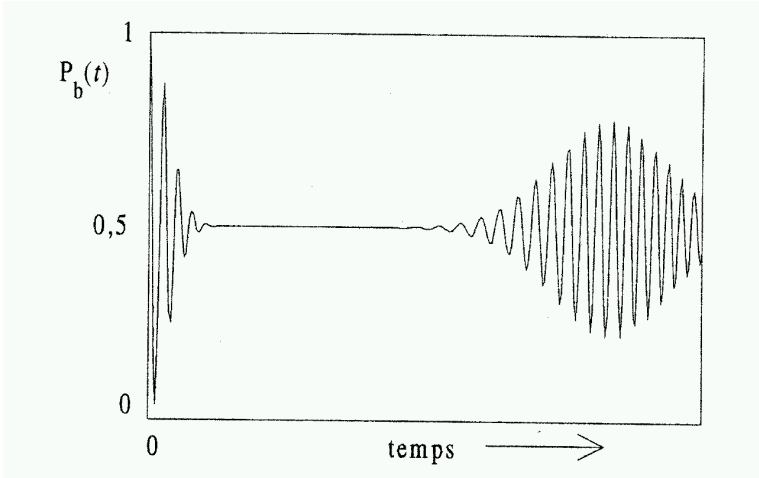

Fig. 5.12: probabilité de trouver l'atome dans l'état inférieur lorsqu'il interagit avec un état cohérent de valeur de $\alpha = 4$

État du système dans la phase de brouillage des oscillations

Dans la suite de cette section, on notera :

$$\alpha = |\alpha| e^{i\phi} = \sqrt{\bar{n}} e^{i\theta} \tag{5.51}$$

où ϕ est à la phase à l'origine du champ appliqué. On se place dans le cas où l'état cohérent contient un nombre moyen de photons $\bar{n}$ non négligeable, et on va chercher à déterminer l'état du système au milieu de la zone de disparition des oscillations, plus précisément à l'instant t_1 tel que :

$$\frac{\Omega_v t_1}{2\sqrt{\bar{n}}} = \pi \tag{5.52}$$

Notons que t_1 est proportionnel à $\sqrt{\bar{n}}$, et donc qu'il ne faut pas que le nombre de photons soit trop grand, car alors t_1 risquerait d'être plus grand que les temps de relaxation du système (dans la pratique $\bar{n} \simeq 10, 100$). On a alors, pour toutes les valeurs de n où c_n est appréciable, en utilisant le développement de la racine autour de sa valeur moyenne :

$$\sqrt{n+1} \simeq \sqrt{\bar{n}} + \frac{1}{2\sqrt{\bar{n}}} \tag{5.53}$$

donc

$$sin(\Omega_v t_1 \sqrt{\bar{n}+1}) = cos(\Omega_v t_1 \sqrt{\bar{n}}) \tag{5.54}$$

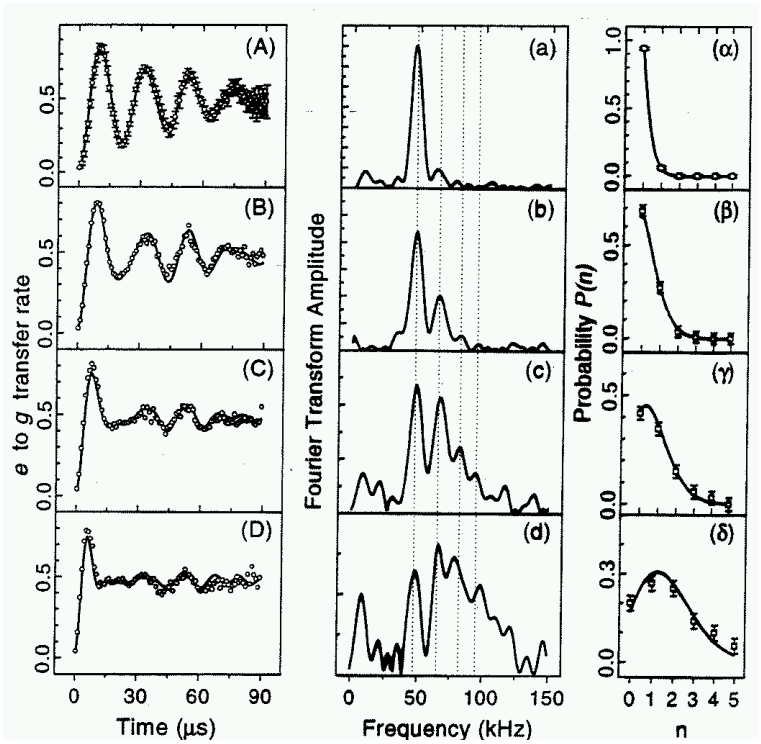

Fig. 5.13: (A), (B), (C), (D) : probabilité mesurée de trouver l'atome dans son état excité en fonction du temps d'interaction lorsque le nombre moyen de photons dans l'état cohérent est respectivement de 0 (avec 0,06 photons d'origine thermique subsistant dans le mode), 0,4, 0,85 et 1,77. (a), (b), (c), (d) : transformées de Fourier correspondantes. (α), (β), (γ), (δ) : distribution du nombre de photons déduite de la transformée de Fourier. La ligne en traits pleins correspond à l'expression théorique

L'état du système à t_1 s'écrit donc :

$$|\Psi(t_1)\rangle = \sum_n e^{-in\omega_0 t_1} cos\frac{\sqrt{n}\Omega_v t_1}{2}\left(c_n|a,n\rangle + e^{-i\omega_0 t_1}c_{n+1}|b,n\rangle\right) \tag{5.55}$$

Si on utilise le fait que $c_{n+1}/c_n = \alpha/\sqrt{n+1} \simeq e^{i\phi}$ pour toutes les valeurs de n où c_n est non négligeable, on trouve qu'il y a à cet instant *factorisation de l'état du système* :

$$|\Psi(t_1)\rangle \simeq |\Psi_{ray}\rangle \otimes \frac{1}{\sqrt{2}}\left(|a\rangle + e^{-i\omega_0 t_1 + i\phi}|b\rangle\right) \tag{5.56}$$

L'état du rayonnement à cet instant étant donné par :

$$|\Psi_{ray}\rangle = \sqrt{2}\sum_n e^{-in\omega_0 t_1} cos\frac{\sqrt{n}\Omega_v t_1}{2} c_n|n\rangle \tag{5.57}$$

Par ailleurs le cosinus figurant dans l'expression précédente peut aussi s'écrire :

$$cos\frac{\sqrt{n}\Omega_v t_1}{2} = cos\pi\sqrt{n\bar{n}} = cos\pi\frac{\bar{n}+n}{2} \tag{5.58}$$

On peut donc mettre l'état du rayonnement sous la forme :

$$|\Psi_{ray}\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}\left(e^{i\pi\bar{n}/2}\sum_n e^{-in\omega_0 t_1}e^{in\pi/2}c_n|n\rangle + e^{-i\pi\bar{n}/2}\sum_n e^{-in\omega_0 t_1}e^{-in\pi/2}c_n|n\rangle\right) \tag{5.59}$$

$$= \frac{1}{\sqrt{2}}\left(e^{i\pi\bar{n}/2}|i\alpha e^{-i\omega_0 t_1}\rangle + e^{-i\pi\bar{n}/2}|-i\alpha e^{-i\omega_0 t_1}\rangle\right) \tag{5.60}$$

L'état du rayonnement est donc une superposition de deux états cohérents d'amplitudes opposées $|i\alpha e^{-i\omega_0 t_1}\rangle|$ et $-i\alpha e^{-i\omega_0 t_1}\rangle$. On a donc produit dans cet état intermédiaire un *"chat de Schrödinger"*, formé de deux états quasi-classiques très différents et en opposition de phase.

État du système dans le régime d'oscillation pour $|\alpha|$ très grand

Si $\bar{n} \gg 1$, l'état cohérent est de plus en plus classique car ses fluctuations quantiques deviennent négligeables en valeur relative ($\Delta E \ll \langle E\rangle$, ou bien $\Delta N = |\alpha| \ll \overline{n} = |\alpha|^2$). t_1 devient très grand, et l'amortissement des oscillations de Rabi n'est plus observable avant que le système ne soit amorti par relaxation. On peut alors écrire que :

$$\sqrt{n} \approx \sqrt{\overline{n}} + (n - \overline{n})\frac{1}{2\sqrt{\overline{n}}} \tag{5.61}$$

tant que $(n-\overline{n})\langle\Delta n = \sqrt{\overline{n}}$. On en conclut que $\sqrt{n}$ reste très voisin (à quelques unités près) de $\sqrt{\overline{n}}$ dans toute la zone où les coefficients $|c_n|^2$ ne sont pas négligeables. Introduisons la notation $\sqrt{\overline{n}}\Omega_v = \Omega_R$. On a alors l'expression approchée suivante de $|\Psi(t)\rangle$:

$$|\Psi(t)\rangle \approx \left(c_n e^{-in\omega_0 t}|n\rangle\right)\otimes|a\rangle\cos\frac{\Omega_R t}{2} + \left(c_n e^{-in\omega_0 t}|n-1\rangle\right)\otimes|b\rangle\sin\frac{\Omega_R t}{2} \tag{5.62}$$

Or on a comme précédemment $c_n/c_{n-1} \simeq= e^{i\phi}$ dans toute la zone où $|c_n|^2 \neq 0$. Moyennant ces approximations, on peut écrire l'état du système sous la forme :

$$|\Psi(t)\rangle \approx \left|\alpha e^{-i\omega_0 t}\right\rangle \otimes \left\{|a\rangle\cos\frac{\Omega_R t}{2} + e^{-i(\omega_0 t-\phi)}|b\rangle\sin\frac{\Omega_r t}{2}\right\} \tag{5.63}$$

On a donc *factorisation à tout instant de l'état complet*, donc *décorrélation*, ou *désintrication* :

$$|\Psi(t)\rangle = |\Psi_{ray}\rangle\otimes|\Psi_{at}\rangle \tag{5.64}$$

L'état du champ est un état cohérent évoluant librement, donc non perturbé par l'interaction avec l'atome, et non pas un chat de Schrödinger comme dans le paragraphe précédent. L'état de l'atome, $|\Psi_{at}\rangle$ présente une oscillation de Rabi à la fréquence $\Omega_R = \sqrt{\overline{n}}\Omega_v = -d_{ab} < \hat{E} > /\hbar$, qui est la fréquence de Rabi de la théorie semi-classique.

Précisons un peu plus ce dernier point : introduisons le vecteur $|\theta\rangle$ défini par $|\theta\rangle = \hat{a}_l^+|\alpha\rangle - \alpha^*|\alpha\rangle$. Il est élémentaire de montrer que ce vecteur a pour norme 1. On peut alors écrire :

$$\hat{a}_l^+|\alpha\rangle = \alpha^*|\alpha\rangle + |\theta\rangle \tag{5.65}$$

Dans le deuxième membre de cette égalité, le premier terme, qui a pour norme $|\alpha|^2$, l'emporte sur le second, de norme 1, lorsque $|\alpha|$ devient très grand. A cette limite, *l'état cohérent est un vecteur propre de* $\hat{a}_l^+$, en plus d'être "naturellement" vecteur propre de $\hat{a}_l$. Ecrivons l'hamiltonien $\widehat{\widetilde{H}}_{JC}$ de Jaynes-Cummings en représentation d'interaction vis à vis du hamiltonien de rayonnement libre $\widehat{H}_{ray}$, c'est-à-dire en enlevant $\widehat{H}_{ray}$ et en remplaçant $\hat{a}_l$ par $\hat{a}_l e^{-i\omega t}$:

$$\widehat{\widetilde{H}}_{JC} = \hbar\omega_0|b\rangle\langle b| + i\frac{\hbar\Omega_v}{2}\left[|a\rangle\langle b|\widehat{a}_l^+ e^{i\omega t} - |b\rangle\langle a|\widehat{a}_l e^{-i\omega t}\right] \tag{5.66}$$

A cause de la propriété des états cohérents que nous venons de signaler, un état initial factorisé du type $|\phi_{at} > \otimes|\alpha >$ avec $|\alpha| \gg 1$ est vecteur propre de la partie rayonnement de ce hamiltonien. La partie rayonnement du vecteur d'état va donc rester dans stationnaire au cours de l'évolution sous l'effet de l'hamiltonien de Jaynes-Cummings : l'état va rester factorisé, du type $|\phi_{at}(t) > \otimes|\alpha >$, et sa partie atomique va évoluer sous l'effet d'un hamiltonien purement atomique, $\widehat{H}_{JC,at}$ qui s'écrit :

$$\widehat{H}_{JC,at} = \hbar\omega_0 \left|b\right\rangle \left\langle b\right| + i\frac{\hbar\Omega_v}{2}\left[\left|a\right\rangle \left\langle b\right| \alpha^* e^{i\omega t} - \left|b\right\rangle \left\langle a\right| \alpha e^{-i\omega t}\right] \tag{5.67}$$

Puisque $\Omega_v\alpha = \Omega_R$, cet hamiltonien n'est autre que l'hamiltonien semi-classique à l'approximation séculaire que nous avons étudié dans le chapitre 2.

On vient donc de trouver la *condition de validité de l'approche semi-classique* : celle-ci donne l'évolution atomique exacte dans le cas où le champ appliqué est cohérent et intense. C'est aussi la condition de validité des équations de Bloch, qui décrivent classiquement les champs appliqués et tiennent compte de l'émission spontanée, phénomène purement quantique, par l'intermédiaire de termes de relaxation.

Précisons que seules les *valeurs moyennes* des quantités atomiques sont décrites par les équations de Bloch. Les fluctuations des variables induites par l'émission spontanée et les fluctuations quantiques des champs appliqués ne sont évidemment pas prises en compte dans ces équations. Les fluctuations dues à l'émission spontanée jouent en particulier un rôle important dans le problème du refroidissement des atomes par rayonnement laser appelé refroidissement "Doppler". De même, pour déterminer l'évolution moyenne du champ, on peut utiliser les équations de Maxwell avec les sources atomiques données par la solution des équations de Bloch. Mais on ne pourra pas déterminer dans ce cadre les variances des champs, pas plus que les corrélations quantiques de tous ordres (entre champs, entre le champ et l'atome), pour lesquelles la théorie quantique est totalement nécessaire. Nous reviendrons sur ces questions de fluctuations et de corrélations dans le dernier chapitre de ce cours.

5. Atome à deux niveaux interagissant avec un mode unique du champ en présence de relaxation

5.1 Position du problème

Le modèle de Jaynes-Cummings décrit en fait une situation très idéaliste où le système atome-mode est totalement isolé. Cette situation correspond assez bien au cas d'un atome de Rydberg, qui a une très longue durée de vie, couplé à une cavité de très grande finesse. Il s'applique moins au cas de l'atome de Césium, de courte durée de vie, dans une cavité de type Fabry-Perot. Il faut donc tenir compte des "fuites" du système atome-mode l vers d'autres états, c'est-à-dire de la relaxation. Nous allons donc chercher des équations du type des équations de Bloch, mais maintenant pour le système atome-mode l décrit en termes de matrice densité.

De manière générale, les pertes du système sont de deux types :

- L'atome est couplé à d'autres modes que le mode l de la cavité : quand il est dans l'état excité, l'émission spontanée le couple aussi à tous les autres modes de même fréquence, mais de directions et de polarisations différentes de celui du mode l. Ces modes étant en nombre infini, nous supposerons, ce qui est généralement le cas, que le taux d'émission spontané vers tous les modes autres que l est peu différent du taux total d'émission spontané dans l'espace libre Γ_{sp}.

- La cavité a des pertes : l'énergie électromagnétique dans la cavité décroît en $e^{-\kappa t}$. Pour donner un ordre de grandeur, la finesse (soit le nombre moyen d'allers-retours que fait la lumière avant de sortir, égal au rapport de l'interval spectral libre c/L à la largeur κ d'une résonance de la cavité) des cavités optiques les plus résonnantes que l'on sache réaliser actuellement est rarement supérieure à 10^5.

Dans le cas de l'expérience sur le Césium mentionnée précédemment, Γ_{sp} vaut environ $6 \times 10^7 s^{-1}$, et κ vaut $2 \times 10^7 s^{-1}$.

5.2 Equation d'évolution des opérateurs dipôle et champ

Écrivons tout d'abord les équations de Heisenberg pour les opérateurs $\hat{s}_+$ et $\hat{a}_\ell$, respectivement égaux, à un facteur multiplicatif près, au dipôle complexe de l'atome et au champ complexe dans la cavité. L'évolution temporelle de ces opérateurs en représentation de Heisenberg -où les états sont égaux à leurs valeurs initiales et où seuls les opérateurs variant dans le temps- vont

nous renseigner sur les dynamiques respectives du dipôle atomique et du champ complexe dans la cavité. En l'absence de toute relaxation, leurs taux de variation sont proportionnels à leur commutateur avec l'hamiltonien de Jaynes-Cummings, soit plus précisément :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\hat{s}_+ &= -i\omega_0\hat{s}_+ - \Omega_v\hat{s}_z\hat{a}_\ell \\ \frac{d}{dt}\hat{a}_\ell &= -i\omega_\ell\hat{a}_\ell + \frac{\Omega_v}{2}\hat{s}_+ \end{aligned} \tag{5.68}$$

En présence de processus de relaxation, on montre qu'il faut rajouter aux taux d'évolution des termes proportionnels aux taux de relaxation respectives, soit :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\hat{s}_+ &= (-i\omega_0 - \frac{\Gamma_{sp}}{2})\hat{s}_+ - \Omega_v\hat{s}_z\hat{a}_\ell \\ \frac{d}{dt}\hat{a}_\ell &= (-i\omega_\ell - \frac{\kappa}{2})\hat{a}_\ell + \frac{\Omega_v}{2}\hat{s}_+ \end{aligned} \tag{5.69}$$

Il s'agit d'un système non fermé d'équation, car l'évolution de $\hat{s}_+$ est liée à celle de l'opérateur $\hat{s}_z\hat{a}_\ell$, dont il faudrait à son tour écrire l'équation d'évolution, qui dépendra d'un nouvel opérateur, et ainsi de suite. L'ensemble de cette hiérarchie d'équations n'est malheureusement pas exactement soluble.

5.3 Régime d'évolution linéaire

On va faire l'approximation qui consiste à remplacer dans la deuxième équation de (5.69) $\hat{s}_z\hat{a}_\ell$ par $\hat{a}_\ell/2$.

Cette approximation est valable dans deux cas : le premier correspond à la situation d'un atome très peu excité en moyenne, pour lequel $\hat{s}_z \simeq 1/2$; la deuxième correspond au phénomène d'émission spontanée d'un atome unique dans la cavité, où l'état initial est l'état $|b;0>$. Dans ce dernier l'évolution se fait dans le sous-espace sous-tendu par les $|b;0\rangle$, $|a;1\rangle$ et $|a;0\rangle$. Il est facile de voir que :

$$\hat{s}_z\hat{a}_\ell\,|a;1\rangle = \frac{1}{2}a_\ell\,|a;1\rangle \quad \hat{s}_z\hat{a}_\ell\,|a;0\rangle = 0 = \frac{1}{2}a_\ell\,|a;0\rangle \quad \hat{s}_z\hat{a}_\ell\,|b;0\rangle = 0 = \frac{1}{2}a_\ell\,|b;0\rangle \tag{5.70}$$

Les opérateurs $\hat{s}_z\hat{a}_\ell$ et $\hat{a}_\ell/2$ coïncident donc dans le sous-espace considéré.

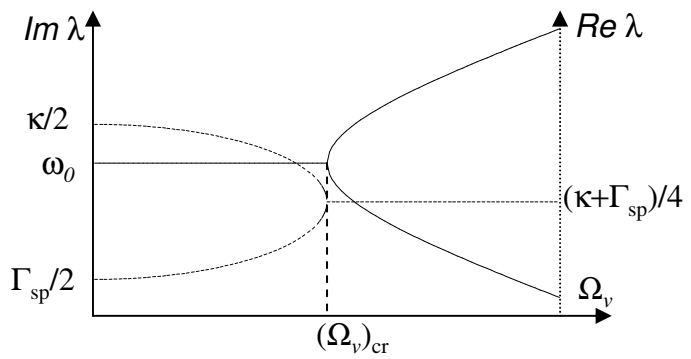

Fig. 5.14: parties réelles et imaginaires des valeurs propres en fonction du couplage Ω_v dans le cas où $\kappa > \Gamma_{sp}$

Lorsqu'on fait cette approximation, on est en présence du système très simple d'équations différentielles linéaires :

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\hat{s}_+ &= (-i\omega_0 - \frac{\Gamma_{sp}}{2})\hat{s}_+ - \frac{\Omega_v}{2}\hat{a}_\ell \\ \frac{d}{dt}\hat{a}_\ell &= (-i\omega_\ell - \frac{\kappa}{2})\hat{a}_\ell + \frac{\Omega_v}{2}\hat{s}_+ \end{aligned} \tag{5.71}$$

Il s'agit d'équations dont la structure est familière : elles décrivent l'évolution de deux *oscillateurs classiques couplés et amortis*, de fréquences propres ω_l et ω_0.

5.4 Régimes de couplage fort et de couplage faible

Nous nous placerons pour simplifier dans le cas exactement résonnant $\omega_l = \omega_0$. Lorsqu'on cherche les valeurs propres du système, on tombe sur une équation du second degré dont le discriminant Δ vaut

$$\Delta = \left(\frac{\Gamma_{sp} - \kappa}{2}\right) - \Omega_v^2 \tag{5.72}$$

On distinguera deux régimes selon le signe de ce discriminant.

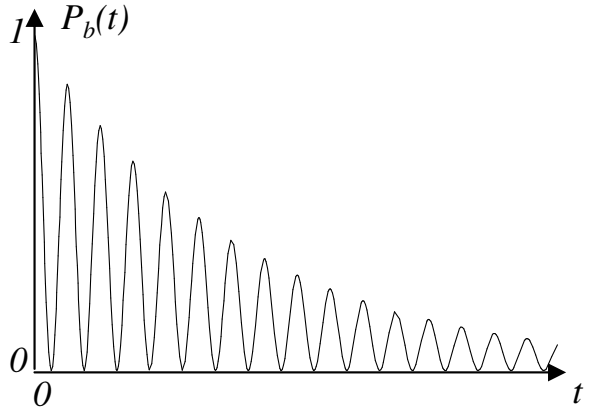

Fig. 5.15: probabilité de trouver le système dans l'état excité en régime de couplage fort

Couplage fort

C'est le cas où $\Omega_v > (\Omega_v)_{cr} = \frac{|\kappa-\Gamma|}{2}$, qui correspond à une faible relaxation (ou à deux relaxations identiques) par rapport au couplage. Les valeurs propres du système valent alors :

$$\lambda_{1,2} = -i(\omega_0 \pm \frac{i}{2}\sqrt{\Omega_v^2 - \frac{|\kappa - \Gamma_{sp}|^2}{4}} - \frac{\kappa + \Gamma_{sp}}{4} \tag{5.73}$$

L'évolution se faisant en $e^{\lambda_{1,2}t}$, on voit que le système relaxe avec un taux $(\kappa+\Gamma_{sp})/4$: c'est en quelque sorte une relaxation "moyenne" entre la relaxation due à la cavité et celle due aux atomes. Il y a par contre deux fréquences d'oscillations (voir figure (5.14)). En l'absence de relaxation, ces deux pulsations sont séparées de Ω_v, comme on peut s'y attendre de la part de deux oscillateurs classiques de mêmes pulsations et couplés entre eux. On retrouve aussi la levée de dégénérescence d'amplitude Ω_v des niveaux de l'atome habillé. Lorsque la relaxation n'est plus négligeable, l'écart entre les fréquences propres du système diminue et s'annule pour $\Omega_v = \frac{|\kappa-\Gamma_{sp}|}{2}$.

De l'évolution de $\hat{s}_+$ et $\hat{a}_\ell$ on peut déduire celle de $\hat{s}_+\hat{s}_-$ et $\hat{a}_\ell^\dagger\hat{a}_\ell$, c'est-à-dire, à un facteur près, l'énergie de l'atome ou celle du champ dans la cavité. Si on part de l'atome dans l'état excité en l'absence de photons dans

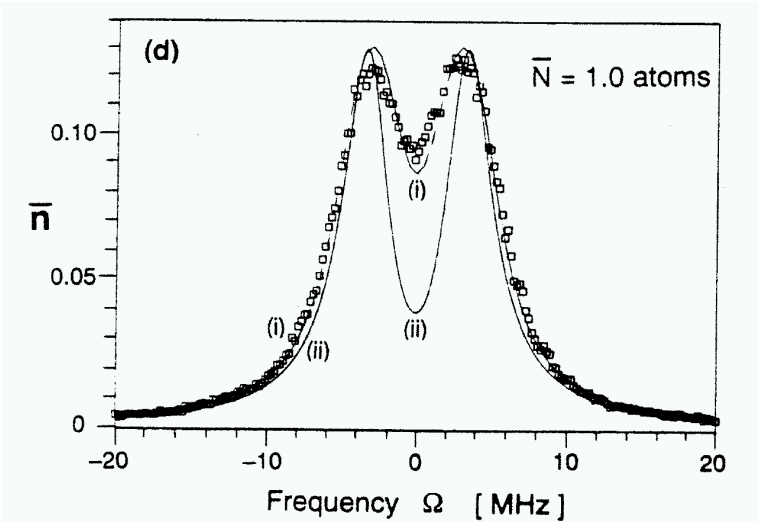

Fig. 5.16: spectre de transmission d'une cavité Fabry-Perot de très grande finesse contenant en moyenne un seul atome et accordée à résonance exacte avec la résonance atomique

la cavité, on trouve que ces deux quantités décroissent dans le temps avec le taux $(\kappa + \Gamma_{sp})/2$ tout en oscillant à la fréquence Ω_v. La probabilité de trouver le système dans l'état excité est donnée sur la figure (5.15). L'énergie totale relaxe demanière monotone, et par suite l'énergie du champ oscille en quadrature avec l'excitation atomique : il y a transfert périodique de l'énergie de la partie atomique à la partie électromagnétique. On peut voir ce phénomène comme une oscillation de Rabi amortie, ou comme l'échange périodique d'énergie qui se produit lorsque deux oscillateurs classiques sont couplés.

L'existence de deux modes propres du système atome+cavité en régime de couplage fort se manifeste aussi sur les propriétés de la cavité : il faut pour cela coupler la cavité à une source extérieure de rayonnement de fréquence ω_s variable au voisinage de ω_l, par exemple en envoyant une onde incidente extérieure à travers l'un des deux miroirs du Fabry-Perot. Ce couplage à une source classique de rayonnement relève de l'approche "semi-quantique", qui a été abordée dans le paragraphe 1.2 du chapitre 4. Il a pour effet de rajouter un terme source dans l'hamiltonien du système, qui s'écrit en représentation d'interaction vis-à-vis de l'hamiltonien de rayonnement et en négligeant les

termes anti-résonnants :

$$\widehat{H}_{SQ,int} = A_l \widehat{a}_l e^{i\omega_s t} + A_l^* \widehat{a}_l^+ e^{-i\omega_s t} \tag{5.74}$$

Il faut alors rajouter l'effet de ce nouveau couplage dans les équations d'évolution des valeur moyennes $e =< \hat{a}_\ell >$ et $d =< \hat{s}_+ >$, égales à un facteur près, à la valeur moyenne du champ intracavité et du dipôle atomique. On obtient un nouveau terme dans l'évolution de e, égal à $< [\widehat{a}_l, \widehat{H}_{SQ,int}]/i\hbar >$ qui vaut ici $A_l^* e^{-i\omega_s t}/i\hbar = -A' e^{-i\omega_s t}$. Si on suppose en outre que le couplage entre la source et la cavité (la transmission du miroir) est suffisamment faible pour qu'il n'y ait jamais plus d'un photon dans la cavité, on peut utiliser les résultats de cette partie. Les équations d'évolution de e et d s'écrivent alors :

$$\frac{d}{dt}e = \left(-i\omega_l - \frac{\kappa}{2}\right) e + \frac{\Omega_v}{2} d - A' e^{-i\omega_s t} \tag{5.75}$$

$$\frac{d}{dt}d = \left(-i\omega_0 - \frac{\Gamma_{sp}}{2}\right) d - \frac{\Omega_v}{2} e \tag{5.76}$$

Ce système comporte maintenant un terme inhomogène et a donc une solution forcée, de la forme $e = e_0 e^{-i\omega_s t}$, $d = d_0 e^{-i\omega_s t}$ donnés par :

$$\left(i(\omega_s - \omega_l) - \frac{\kappa}{2}\right) e_0 + \frac{\Omega_v}{2} d_0 = A' \tag{5.77}$$

$$\left(i(\omega_s - \omega_0) - \frac{\Gamma_{sp}}{2}\right) d_0 - \frac{\Omega_v}{2} e_0 = 0 \tag{5.78}$$

Ce système se résout aisément pour donner la valeur du champ intracavité :

$$e_0 = A' \frac{i(\omega_s - \omega_0) + \frac{\Gamma_{sp}}{2}}{(i\omega_s + \lambda_1)(i\omega_s + \lambda_2)} \tag{5.79}$$

où λ_1 et λ_2 sont les deux exposants caractéristiques déterminés au début de ce paragraphe. L'énergie électromagnétique intracavité est proportionnelle à $|e_0|^2$ qui s'écrit :

$$|e_0|^2 = |A'|^2 \frac{(\omega_s - \omega_0)^2 + \frac{\Gamma_{sp}^2}{4}}{(\omega_s + Im\{\lambda_1\})^2 + Re\{\lambda_1\}^2)(\omega_s + Im\{\lambda_2\})^2 + Re\{\lambda_2\}^2)} \tag{5.80}$$

Elle présentera donc un maximum au voisinage des résonances du système, c'est-à-dire lorsque ω_s coïncidera avec $-Im\{\lambda_1\}$ ou $-Im\{\lambda_2\}$, la largeur des

pics correspondants étant égale à $Re\{\lambda_1\}$ et $Re\{\lambda_2\}$, ces quantités étant données sur la figure (5.14). On obtient donc directement de cette manière le spectre du système couplé.

En mesurant la transmission de la cavité à travers le deuxième miroir du Fabry-Perot, on obtient une quantité proportionnelle à $|e_0|^2$. Lorsque le champ incident est très faible et qu'on fait varier sa fréquence autour de la fréquence commune de résonance de la cavité vide et de l'atome, on observe, en l'absence d'atome un pic de résonance d'Airy unique (donné par l'expression précédente avec $\Omega_v = 0$). Par contre si la cavité contient un atome, c'est le système atome+cavité qui est testé, et on observe un dédoublement du pic de transmission correspondant à l'apparition des deux nouvelles fréquences propres du système (voir figure 5.16, tirée de la référence R. Thompson et al, Phys. Rev. Letters, **68**, 1133 (1992)).

Couplage faible

C'est le cas où $\Omega_v < (\Omega_v)_{cr} = \frac{|\kappa - \Gamma_{sp}|}{2}$, qui correspond à une forte relaxation par rapport au couplage. Les valeurs propres valent alors :

$$\lambda = -i\omega_0 \pm \frac{1}{2}\sqrt{\frac{|\kappa - \Gamma_{sp}|^2}{4} - \Omega_v^2} - \frac{\kappa + \Gamma_{sp}}{4} \tag{5.81}$$

La partie imaginaire de λ vaut $-\omega_0$. Il n'y a plus qu'une seule fréquence d'oscillation pour le système, qui est la fréquence non perturbée ω_0 : la levée de dégénérescence due au couplage est donc totalement annulée par l'effet de la relaxation. Par contre *le système a deux taux de relaxation* $\Gamma_\pm$:

$$\Gamma_\pm = \frac{\kappa + \Gamma_{sp}}{4} \pm \frac{1}{2}\sqrt{\frac{|\kappa - \Gamma_{sp}|^2}{4} - \Omega_v^2} \tag{5.82}$$

Ces deux taux tendent vers $\frac{\kappa}{2}$ et $\frac{\Gamma_{sp}}{2}$ lorsque le couplage Ω_v tend vers zéro (voir figure (6.12)). Lorsque Ω_v est petit, on a, par exemple dans le cas $\kappa > \Gamma_{sp}$:

$$\Gamma_+ = \frac{\kappa}{2} - \frac{\Omega_v^2}{2(\Gamma_{sp} - \kappa)} \tag{5.83}$$

$$\Gamma_- = \frac{\Gamma_{sp}}{2} + \frac{\Omega_v^2}{2(\Gamma_{sp} - \kappa)} \tag{5.84}$$

La deuxième relation montre en particulier que *l'atome a une durée de vie raccourcie* lorsqu'on le met dans une cavité résonnante avec la transition, même non parfaite : c'est l'"effet Purcell". En revanche, la cavité a une durée de vie rallongée par le même couplage.

Plaçons nous dans le cas limite de la "mauvaise cavité" $\kappa >> \Gamma_{sp}$ (avec $\kappa >> \Omega_v$). Si on introduit la valeur du taux d'émission spontanée Γ_{sp} et celle de Ω_v, on trouve :

$$\Gamma_- \simeq \frac{\Gamma_{sp}}{2} \frac{3c\lambda^3}{8\pi\kappa V^2} \tag{5.85}$$

Il y a accélération de l'émission spontanée, d'autant plus grande que κ et V sont faibles (tout en ayant $\kappa >> \Omega_v$) .

Si la cavité est de moins en moins résonnante, κ devient trop grand, et on ne peut plus donner un rôle particulier au mode discret résonnant l de la cavité. On a plutôt affaire dans la cavité à une bande de fréquences, donc à un continuum "structuré", de largeur faible mais non nulle. Dans ce cas c'est la règle d'or de Fermi qu'on utilise, mais avec une densité d'états $\rho(E)$ modifiée par rapport à celle du vide. Dans ce cas, le taux d'emission spontanée est plus grand que celui dans l'espace libre lorsque la cavité est résonnante avec l'atome, et plus petit lorsque la cavité est hors résonance. Le calcul([4]) montre que le taux maximum d'émission vaut $\Gamma_{sp}F_{Purcell}$, le *facteur de Purcell* $F_{Purcell}$ étant égal à :

$$F_{Purcell} = \frac{3}{16\pi^2} \frac{Q\lambda^3}{V_{mod}} \tag{5.86}$$

V_{mod} étant le volume du mode dans la cavité. Des facteurs $F_{Purcell}$ de l'ordre de 100 à 1000 ont été mesurés dans les expériences.

5.5 *Atome à deux niveaux avec émission spontanée interagissant avec un champ laser monomode intense en l'absence de cavité*

Dans cette configuration, comme nous l'avons déjà signalé, le couplage se fait essentiellement avec le mode laser l, mais il y a aussi émission spontanée vers d'autres modes. Si on décrit, en première approximation, le champ laser par un état nombre $|n\rangle$, le système ne reste donc pas dans la multiplicité $\mathcal{M}_n$ sous-tendue par $|a;n\rangle$ et $|b,n-1\rangle$. Il peut se retrouver dans l'état $|a;n-1,1_{l'}\rangle$ par émission spontanée, donc dans la multiplicité $\mathcal{M}_{n-1}$ sous-tendue par les états $|a;n-1\rangle$ et $|b,n-2\rangle$. Il y a *cascade radiative* du système entre les multiplicités de l'atome habillé, plus précisément entre les

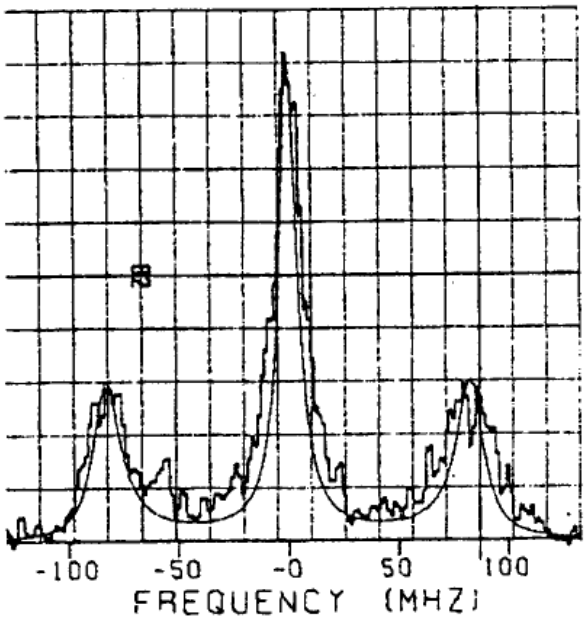

Fig. 5.17: mesure du spectre de fluorescence d'un atome de sodium éclairé à résonance exacte par un laser de $640mW/cm^2$

niveaux de l'atome habillé, peu perturbés par cette instabilité (si on suppose que le déplacement de Lamb est petit devant le couplage, égal maintenant à $\Omega_v\sqrt{n}$. Les fréquences des photons d'émission spontanée sont donc égales aux fréquences de Bohr de l'atome habillé :

$$E_{\pm n} - E_{\pm n-1} = \omega_l \pm \sqrt{n}\frac{\Omega_v}{2} \pm \sqrt{n-1}\frac{\Omega_v}{2} \tag{5.87}$$

Comme $n \gg 1$, $\sqrt{n} \approx \sqrt{n-1}$, et on n'a en fait que trois fréquences de transition possibles, ω_l et $\omega_l \pm \sqrt{n}\Omega_v$. Rappelons enfin que $\sqrt{n}\Omega_v \approx \Omega_R$, la fréquence de Rabi purement atomique de la théorie semi-classique. La théorie complète du phénomène donne en outre les largeurs ($\approx \Gamma_{sp}$) des résonances. L'émission spontanée d'un atome irradié par une onde laser intense a donc lieu à trois fréquences au lieu d'une, séparées par la pulsation de Rabi : c'est le *triplet de fluorescence*, ou triplet de Mollow, que l'on peut observer dès que $\Omega_R > \Gamma$ (voir figure (5.17), tirée de la référence : R. Grove et al, Phys. Rev. A, **15**, 227 (1977)).

6. Récapitulatif

Nous avons vu dans ce chapitre un certain nombre de phénomènes qui apparaissent lorsqu'on fait interagir un atome avec un champ résonnant ou quasi-résonnant. Citons parmi les phénomènes les plus importants :

- La possibilité de créer et de manipuler des superpositions d'états atomiques ou atome-champ (états "intriqués" ou états de l'atome habillé), c'est-à-dire de la "cohérence quantique".
- Les effets de saturation : on constate qu'un système à deux niveaux est un système très "non linéaire" (à la différence d'un oscillateur harmonique).
- L'importance de la perturbation de l'atome par son interaction avec un champ, vide ou dans un état de grande énergie : déplacement des niveaux atomiques, apparition de triplet, diminution ou augmentation du taux d'emission spontanée
- Le rôle particulier de l'état cohérent du champ, qui permet de décorréler l'atome et le champ, et donc d'écrire des équations d'évolution pour les seules variables atomiques, qui sont les équations de Bloch du chapitre 2.
- Le rôle des corrélations inter-atomiques dans l'évolution, lorsque le champ est couplé de manière cohérente à une assemblée d'atomes.

6. ASSEMBLÉE D'ATOMES A DEUX NIVEAUX ET CHAMP QUASI-RÉSONNANT

Nous allons dans ce chapitre considérer le cas où N atomes à deux niveaux identiques, de positions $\vec{r}_i$ $(i = 1, ..., N)$ fixes, interagissent avec une onde monochromatique. Une analyse superficielle peut laisser penser que ces N atomes identiques ajoutent leurs effets et que les phénomènes sont les mêmes qu'avec un seul atome, multipliés par N. Nous allons voir que ce n'est pas toujours le cas.

1. Approche semi-classique

1.1 Hamiltonien semi-classique

L'espace de Hilbert auquel nous nous intéressons ici est sous-tendu par les vecteurs $|ai>$ et $|bi>$ qui sont associés aux niveaux fondamental et excité de l'atome de numéro i. Sa dimension est donc $2N$: les états qu'il contient ne sont en général,pas factorisables en états de chaque atome. Il décrit donc naturellement toutes les *corrélations interatomiques* susceptibles d'apparaître.

En l'absence d'interaction entre atomes, supposés suffisamment éloignés l'un de l'autre, et en présence d'une onde classique appliquée $E\epsilon e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r_i}-\omega\mathbf{t}-\phi)}$ l'hamiltonien semi-classique à l'approximation dipolaire et séculaire s'écrit :

$$\widehat{H} = -\sum_{i=1}^{N} \hbar\delta \left|bi\right\rangle \left\langle bi\right| - \frac{1}{2} d_{ab} E \sum_{i=1}^{N} \left[\left|ai\right\rangle \left\langle bi\right| e^{-i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r_i}+\phi)} + \left|bi\right\rangle \left\langle ai\right| e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r_i}+\phi)}\right] \tag{6.1}$$

(avec $\delta = \omega - \omega_0$) que l'on peut aussi écrire à l'aide des opérateurs de spin fictif de chaque atome, proportionnels aux matrices de Pauli, introduits dans le chapitre 2 :

$$\hat{s}_{+i} = \left|bi\right\rangle \left\langle ai\right| \quad \hat{s}_{zi} = \frac{1}{2}\left(\left|bi\right\rangle \left\langle bi\right| - \left|ai\right\rangle \left\langle ai\right|\right) \tag{6.2}$$

On a alors :

$$\widehat{H} = -\hbar\delta \sum_{i=1}^{N} (\hat{s}_{zi} + \frac{\hat{1}}{2}) - \frac{1}{2} d_{ab} E \sum_{i=1}^{N} \left[\hat{s}_{-i} e^{-i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r_i}-\phi)} + \hat{s}_{+i} e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r_i}-\phi)} \right] \tag{6.3}$$

1.2 Vecteur de Bloch collectif

Plaçons nous maintenant dans le cas simple où les atomes sont à des distances mutuelles bien inférieures à la longueur d'onde autour de l'origine des coordonnées, de sorte que $|\mathbf{k} \cdot \mathbf{r_i}| \ll \mathbf{1}$. On peut alors introduire les opérateurs collectifs :

$$\hat{S}_z = \sum_{i=1}^{N} \hat{s}_{zi} \quad \hat{S}_{\pm i} = \sum_{i=1}^{N} \hat{s}_{\pm i} \tag{6.4}$$

qui sont attachés à l'opérateur somme de tous les spins fictifs de tous les atomes de l'assemblée, qui est aussi un moment cinétique, en tant que somme d'opérateurs moments cinétiques :

$$\hat{\vec{S}} = \sum_{i=1}^{N} \hat{\vec{s}}_i \tag{6.5}$$

La valeur moyenne du vecteur $\widehat{\vec{S}}$ dans l'état du système n'est autre que le *vecteur de Bloch collectif* décrivant l'état de l'assemblée des N atomes.

On appellera $|S, M_S>$ les vecteurs propres communs à $\hat{\vec{S}}^2$ de valeur propre $S(S+1)$ et $\hat{S}_z$ de valeur propre M_S. Comme $\hat{\vec{S}}$ est somme de N moments cinétiques $1/2$, S peut prendre toutes les valeurs comprises entre 0 et $N/2$.

1.3 Evolution du système

L'hamiltonien semi-classique s'écrit finalement :

$$\widehat{H} = -\hbar\delta(\hat{S}_z + \frac{N}{2}\hat{1}) + \hbar\Omega_R \left(\hat{S}_x \cos\phi + \hat{S}_y \sin\phi \right) \tag{6.6}$$

On remarque que l'hamiltonien commute avec $\widehat{\vec{S}}^2$: le nombre quantique S sera donc conservé au cours de l'évolution. Considérons le cas particulier

où tous les atomes sont initialement dans l'état inférieur $|a\rangle$. L'état initial est alors :

$$|\Psi_0\rangle = |a1, a2, ..., aN\rangle = |S = \frac{N}{2}, M_S = -\frac{N}{2}\rangle \tag{6.7}$$

En effet, tous les atomes étant dans un état de $s_{iz} = -1/2$, on a $S_z = M_S = -N/2$, qui ne peut correspondre qu'à $S = N/2$. L'évolution ultérieure du système va donc se faire à $S = N/2$ constant, donc dans le sous-espace sous-tendu par les vecteurs $|S = \frac{N}{2}, M_S\rangle$ avec $N/2 \geq M_S \geq -N/2$.

On a par exemple :

$$\begin{aligned} |S = \frac{N}{2}, M_S = -\frac{N}{2} + 1\rangle| &= \frac{1}{\sqrt{N}}\hat{S}_+|\Psi_0\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}}\sum_i \hat{s}_{+i}|a1, a2, ..., aN\rangle \\ &= \frac{1}{\sqrt{N}}\sum_i |a1, a2, .., bi, .., aN\rangle \end{aligned} \tag{6.8}$$

Il s'agit de l'état où un atome est excité, sans qu'on sache lequel. Cet état n'est pas factorisable : il témoigne de l'existence de corrélations quantiques entre atomes. Les niveaux suivants, appelés "états de Dicke", $|S = \frac{N}{2}, -\frac{N}{2} + m\rangle$ contiennent m excitations délocalisées dans l'assemblée d'atomes, jusqu'à l'état où tous les N atomes sont excités :

$$|\Psi_e\rangle = |b1, b2, ..., bN\rangle = |S = \frac{N}{2}, M_S = \frac{N}{2}\rangle \tag{6.9}$$

qui ne contient aucune corrélation inter-atomique.

L'opérateur d'évolution, est, à un facteur de phase près, un opérateur de rotation, parce qu'il s'écrit $\exp iN\delta t/2 \exp(-i\widehat{\vec{S}}\cdot\vec{\Omega}t)$, avec un vecteur rotation $\vec{\Omega}t$ identique à celui du cas à un atome. Le vecteur de Bloch effectue donc la précession de Rabi que nous connaissons bien, même s'il est "plus long" que dans le cas d'un atome unique. A résonance exacte $\delta = 0$ la précession transformera l'état non excité $|\Psi_0\rangle$ en l'état complètement excité $|\Psi_e\rangle$ au bout d'un temps $\pi/2\Omega_R$ (impulsion π). Une impulsion $\pi/2$ créera un état $|\Psi_d\rangle|S = \frac{N}{2}, M_S \simeq 0\rangle$ de dipôle total maximal. On peut montrer que :

$$\langle S = \frac{N}{2}, M_S|\hat{s}_{+i}\hat{s}_{-j}|S = \frac{N}{2}, M_S\rangle = \frac{N^2/4 - m^2}{N(N-1)} \tag{6.10}$$

Cette relation montre que les *corrélations entre dipôles atomiques individuels sont maximales* dans l'état $|\Psi_d >$, et nulles dans les états extrêmes $|\Psi_0\rangle$ et $|\Psi_e\rangle$.

On peut montrer que cet état est susceptible de rayonner de manière maximale, car tous les dipôles y sont en phase. Le champ rayonné y va donc être proportionnel à N, et donc l'énergie en N^2. On appelle transitoires cohérents les effets collectifs qui se produisent dans ces conditions.

1.4 Cas d'atomes éloignés

Nous nous plaçons maintenant dans le cas où la condition $|\mathbf{k}\cdot\mathbf{r_i}| \ll \mathbf{1}$ n'est pas satisfaite. Il faut donc conserver les facteurs de phase dans le hamiltonien. On alors introduit alors les opérateurs :

$$\begin{aligned}
\hat{S}_x &= \sum_{i=1}^{N} (\cos(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r_i})\hat{\mathbf{s}}_{\mathbf{xi}} + \sin(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r_i})\hat{\mathbf{s}}_{\mathbf{yi}}) \\
\hat{S}_y &= \sum_{i=1}^{N} (-\sin(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r_i})\hat{\mathbf{s}}_{\mathbf{xi}} + \cos(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r_i})\hat{\mathbf{s}}_{\mathbf{yi}}) \qquad (6.11) \\
\hat{S}_z &= \sum_{i=1}^{N} \hat{s}_{zi} \qquad (6.12)
\end{aligned}$$

Il est facile, en calculant les différents commutateurs, de vérifier que ce sont les trois composantes d'un opérateur moment cinétique, même s'il n'est plus la somme pondérée des moments cinétiques de chaque atome. On a aussi :

$$\hat{S}_{\pm} = \sum_{i=1}^{N} e^{\pm i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r_i}} \hat{s}_{\pm i} \qquad (6.13)$$

L'hamiltonien a donc toujours une expression de la forme (6.6), et l'évolution correspondante est toujours une précession du vecteur de Bloch collectif $< \hat{\vec{S}} >$ à la fréquence de Rabi identique à celle d'un seul atome, et S est toujours une constante du mouvement. L'état quantique décrivant tous les atomes dans l'état fondamental est toujours l'état $|S = \frac{N}{2}, M_S\rangle$. Par contre l'état contenant une seul excitation délocalisée s'écrit maintenant :

$$|S = \frac{N}{2}, M_S = \frac{N}{2} - 1\rangle| = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_i e^{i(bfk\cdot\mathbf{r_i}}|a1, a2, .., bi, .., aN\rangle \qquad (6.14)$$

Le phénomène de mise en phase progressive des dipôles se produit donc aussi dans ce cas, mais avec des facteurs de phase supplémentaires pour chaque

atome. On aura en particulier un diagramme spatial de rayonnement plus complexe qu'un simple diagramme dipolaire, avec une émission préférentielle dans la direction de $\mathbf{k}$.

1.5 Décohérence inter-atomique

On a supposé dans la section précédente que le couplage entre chacun des N atomes et le champ était *parfaitement cohérent*. En conséquence les dipôles de tous les atomes oscillent en phase, et peuvent interférer de manière parfaitement constructive. Tout processus susceptible d'affecter de manière différente les phases des dipôles des différents atomes va détruire les effets que nous venons d'esquisser : citons les processus de dissipation du dipôle (collisions, émission spontanée ...), qui agissent indépendamment sur chaque atome, des champs magnétiques ou électriques inhomogènes ou l'élargissement Doppler, qui modifient ω_0 de manière différente pour les différents atomes, les mouvements relatifs de ces atomes, les inhomogénéités des valeurs de l'onde au niveau de chacun des atomes.

Ces perturbations vont entraîner une décohérence entre les dipôles des atomes, et les interférences vont se brouiller. Seules les grandeurs énergétiques ne s'annuleront pas, et seront simplement égales à N fois celles d'un atome unique. L'évolution du nombre total d'atomes excités obéira alors à une équation du type Einstein même en présence d'un champ parfaitement monochromatique.

2. Approche purement quantique

2.1 Hamiltonien quantique

A l'approximation dipolaire et séculaire, et en supposant toujours $|\mathbf{k}\cdot\mathbf{r_i}| \ll \mathbf{1}$ pour simplifier, il est facile de se convaincre que l'hamiltonien du système (N atomes - champ quantique) s'écrit :

$$\widehat{H} = \hbar\omega_0(\frac{N}{2}\hat{1} + \hat{S}_z) + \sum_\ell \hbar\omega_\ell \widehat{a}_\ell^\dagger \widehat{a}_\ell - i\sum_\ell \mathbf{d}_{ab}\cdot\varepsilon_\ell\mathcal{E}_\ell\left(\hat{S}_-\widehat{a}_\ell^\dagger - \hat{S}_+\widehat{a}_\ell\right) \quad (6.15)$$

Il commute comme le précédent avec $\widehat{\vec{S}}^2$, et S reste donc un bon nombre quantique : si on prépare initialement l'assemblée d'atomes dans l'état $|\Psi_0\rangle$

(aucune excitation atomique) ou $|\Psi_e\rangle$ (tous les atomes sont excités), le système évoluera ensuite dans le sous-espace sous-tendu par les vecteurs $|S = N/2, M_S > \otimes|n_1, ..., n_\ell, .. >$, dans lesquels les excitations atomiques sont également réparties entre les atomes.

2.2 Emission spontanée d'un ensemble d'atomes dont un seul est excité

Nous allons commencer par étudier le problème de l'émission spontanée d'une assemblée de N atomes contenant un seul atome excité, sans qu'on sache précisément quel est l'atome excité. Un tel état peut être préparé par interaction des N atomes se trouvant tous dans l'état fondamental (état $|S = N/2, M_S = -N/2 >$) avec un photon unique résonnant. On est alors sûr qu'il n'y a au maximum qu'une seule excitation dans le système. L'état initial de l'ensemble photon-atomes est alors $|S = N/2, M_S = -N/2 + 1 > \otimes|0 >$.

D'après la règle d'or de Fermi, le taux d'émission spontanée du niveau $|\Psi_i\rangle$ vers le niveau $|\Psi_f\rangle$ est proportionnelle à :

$$\left|\langle\Psi_i|\hat{S}_+\widehat{a}_\ell|\Psi_f\rangle\right|^2 = \left|\langle\frac{N}{2}, -\frac{N}{2} + 1|\hat{S}_+|\frac{N}{2}, -\frac{N}{2}\rangle\right|^2 = N \tag{6.16}$$

L'émission spontanée d'un atome excité en présence de $N - 1$ autres non excités est donc N fois plus rapide que celle d'un atome excité unique. C'est une manifestation des corrélations inter-atomiques fortes qui existent dans un tel état intriqué.

Intéressons-nous au cas simple où $N = 2$. L'état à une seule excitation s'écrit simplement dans ce cas :

$$|S = 1, M_S = 0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|a1, b2\rangle + |b1, a2\rangle) \tag{6.17}$$

Il rayonne deux fois plus vite que l'atome 1 ou l'atome 2 pris séparément. Mais il existe un autre état à une seule excitation, l'état singulet :

$$|S = 0, M_S = 0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|a1, b2\rangle - |b1, a2\rangle) \tag{6.18}$$

A la différence de l'état triplet précédent, cet état n'est pas couplé à l'état où les deux atomes sont dans l'état fondamental, car la transition impliquerait une variation du nombre quantique S. Il ne rayonne donc pas du tout et a

une durée de vie limitée seulement par les processus de décohérence interatomique : c'est le phénomène de *subradiance*, due à une interférence destructive et non plus constructive comme dans le cas précédent, entre les chemins possibles menant à l'état final. Cet état peut aussi être qualifié d"'état noir" car il ne donne pas lieu à l'observation de lumière de fluorescence. Nous rencontrerons dans le chapitre suivant plusieurs exemples d'états noirs, dont la fluorescence est empêchée par un phénomène d'interférence quantique destructive.

2.3 Emission spontanée d'une assemblée d'atomes tous excités : superfluorescence ou superradiance

Considérons maintenant l'émission spontanée d'une assemblée de N atomes excités placés dans le vide de rayonnement. L'état initial du système est maintenant $|S = N/2, M_S = N/2 > \otimes|0>$, qui est couplé par l'hamiltonien d'interaction agissant aux différents ordres de perturbation (cascade radiative) à tous les états $|\Psi_m\rangle = |S = N/2, M_S = N/2 - m > \otimes|0, .., 1_\ell, .., 1_{\ell'}, .. >$, qui comporte m photons uniques de fréquence ω_0 dans m modes différents (en négligeant l'émission improbable de deux atomes différents dans le même mode du champ). Le taux d'émission spontanée du niveau $|\Psi_m\rangle$ vers le niveau $|\Psi_{m+1}\rangle$ est proportionnelle à :

$$\left|\langle\Psi_m|\hat{S}_+\widehat{a}_\ell|\Psi_{m+1}\rangle\right|^2 = \left|\langle\frac{N}{2}, \frac{N}{2} - m|\hat{S}_+|\frac{N}{2}, \frac{N}{2} - m - 1\rangle\right|^2 = (N - m)(m + 1) \tag{6.19}$$

Ce facteur vaut N pour m=0 : l'émission spontanée démarre N fois plus vite que pour un seul atome, comme dans le cas précédent. Le taux de désexcitation augmente ensuite avec m pour culminer à $\frac{N}{2}(\frac{N}{2} + 1)$ pour $m = \frac{N}{2}$, puis re-décroît pour s'annuler lorsque $m = N$, état final du processus. On voit donc que lorsque le vecteur de Bloch est proche du plan horizontal, l'émission spontanée est en N^2, effet de la mise en phase des dipôles atomiques qui rayonnent comme un "grand dipôle" d'amplitude proportionnelle à N.

L'approche du paragraphe précèdent ne donne pas toute la dynamique, car il n'y a pas pas émission successive d'un niveau $|\Psi_m\rangle$ au suivant : à tout instant la fonction d'onde se décompose sur l'ensemble des états $|\Psi_m\rangle$. L'analyse complète de ce phénomène est au delà des ambitions de ce cours. On peut la trouver par exemple dans [13]. On trouve que l'intensité émise au cours du temps a l'allure de la figure (6.1) : Il y a augmentation de

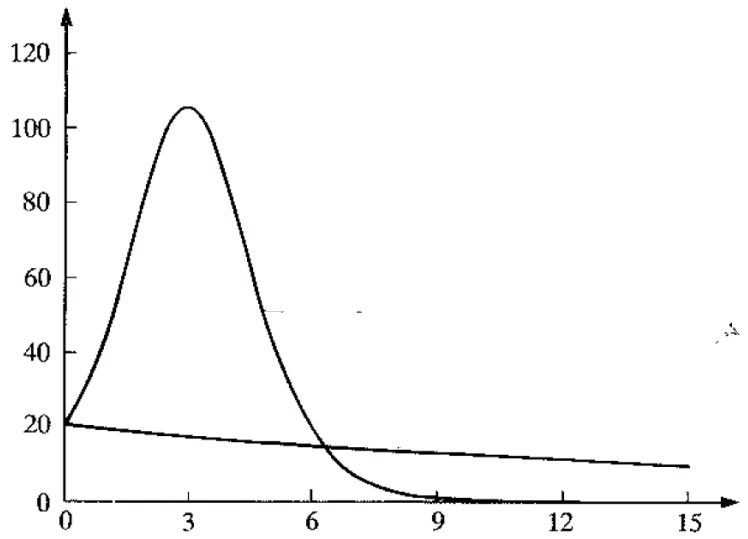

Fig. 6.1: Evolution temporelle de l'intensité émise par un ensemble de N atomes excités, comparée à l'émission spontanée habituelle

l'intensité de fluorescence, correspondant à la mise en phase successive des dipôles atomiques, puis processus de type "avalanche" quand le vecteur de Bloch se rapproche du plan horizontal. L'intensité atteint alors un pic dont la hauteur varie comme N^2. L'énergie totale disponible, donc l'aire sous la courbe de la figure (6.1) n'étant que de $N\hbar\omega_0$, ce pic est très étroit, avec une largeur variant en $1/N$: l'émission s'arrête alors brutalement. Ce type de comportement temporel, prédit par Dicke (RH. Dicke, Phys. Rev. **93** 99 (1954)) est appelé *superradiance* ou *superfluorescence*

2.4 Couplage avec un mode unique du champ

Considérons maintenant une situation fréquente de l'électrodynamique quantique en cavité : N atomes placés dans un cavité optique résonnante sur un mode unique de fréquence ω_ℓ. L'hamiltonien de Jaynes-Cummings "collectif" s'écrit alors :

$$\widehat{H}_{JC} = \hbar\omega_0 \left(\frac{N}{2} - \hat{S}_z\right) + \hbar\omega_\ell \widehat{a}_\ell^\dagger \widehat{a}_\ell + i\frac{\hbar\Omega_v}{2}\left[\hat{S}_- \widehat{a}_\ell^\dagger - \hat{S}_+ \widehat{a}_\ell\right] \tag{6.20}$$

On va s'intéresser aux états de plus basse énergie du système :

- L'état fondamental est évidemment l'état $|S = N/2, M_S = N/2 > \otimes|0>$ où tous les atomes sont dans l'état fondamental et la cavité dans le vide. Cet état n'est couplé à aucun autre état par l'hamiltonien $\hat{H}_{JC}$, et reste donc inchangé par l'interaction.
- L'état $|S = N/2, M_S = -N/2, n = 1\rangle$ n'est couplé qu'à l'état $|S = N/2, M_S = -N/2 + 1, n = 0\rangle$;
- L'état $|S = N/2, M_S = -N/2, n = 2\rangle$ est couplé aux états $|S = N/2, M_S = -N/2 + 1, n = 1\rangle$ et $|S = N/2, M_S = -N/2 + 2, n = 0\rangle$;

et ainsi de suite.

Pour trouver les éléments propres de $\hat{H}_{JCC}$, il faut donc diagonaliser des matrices 2×2, 3×3, etc ..., ce qui est plus difficile que dans le cas d'un seul atome. Tenons-nous en ici au cas non trivial le plus simple, celui de la première multiplicité $\mathcal{E}_1 = (|N/2, -N/2, 1\rangle, |N/2, -N/2 + 1, 0\rangle)$. Ces deux états ont pour énergies $\hbar\omega$ et $\hbar\omega_0$ en l'absence d'interaction, et l'élément de matrice qui les couple vaut :

$$\langle N/2, -N/2, 1|\hat{H}_{JCC}|N/2, -N/2 + 1, 0\rangle = i\frac{\hbar\Omega_v}{2}\sqrt{N} \tag{6.21}$$

On retrouve la matrice 2×2 rencontrée dans le cas d'un seul atome, mais avec un élément de matrice non diagonal multiplié par $\sqrt{N}$. on aura donc des niveaux d'énergie analogues à ceux de la figure (5.11), mais avec une levée de dégénérescence à résonance égale à $\hbar\Omega_v\sqrt{N}$.

Si à l'instant initial les atomes sont tous dans l'état fondamental en présence d'un champ très faiblement excité, se décomposant uniquement sur les états $|0\rangle$ et $|1\rangle$, ou bien s'il n'y a qu'un atome excité dans la cavité vide de photons, l'évolution ne se fera que dans les multiplicités $\mathcal{E}_0$ et $\mathcal{E}_1$. Un raisonnement analogue à celui des paragraphes précédents montre qu'on aura donc une oscillation de Rabi, mais à la fréquence $\Omega_v\sqrt{N}$: à la différence du cas semi-classique, l'oscillation de Rabi est *accélérée* par un facteur $\sqrt{N}$ par rapport au cas à un atome, et le spectre de transmission de la cavité aura deux pics distants de cette quantité.

2.5 Equations d'évolution du dipôle total et du champ

Ce sont les mêmes que celles que nous avons trouvé pour l'atome unique au paragraphe 4.2 du chapitre 5, car les règles de commutation sont les mêmes pour $\hat{\vec{S}}$ que pour $\hat{\vec{s}}_i$. On a donc, en l'absence de relaxation et à résonance

exacte $\omega_0 = \omega_\ell$:

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\hat{S}_+ &= -i\omega_0\hat{S}_+ - \Omega_v\hat{S}_z\hat{a}_\ell \\ \frac{d}{dt}\hat{a}_\ell &= -i\omega_0\hat{a}_\ell + \frac{\Omega_v}{2}\hat{S}_+ \end{aligned} \tag{6.22}$$

On va se restreindre au cas d'une assemblée d'atomes peu excitée, c'est-à-dire où le nombre m d'atomes excités est petit devant N, ce qui est une condition beaucoup moins contraignante que dans le cas d'un seul atome dans la cavité. On peut donc remplacer dans les équations précédentes $\hat{S}_z$ par $N/2$. On obtient alors un système fermé d'équations pour les opérateurs $\hat{S}_+$ et $\hat{a}_\ell$ qui a pour solution :

$$\begin{aligned} \hat{S}_+(t) &= e^{-i\omega_0 t}\left(\hat{S}_+\cos(\Omega_R t/2) - \hat{a}_\ell\sqrt{N}\sin(\Omega_R t/2\right) \\ \hat{a}_\ell(t) &= e^{-i\omega_0 t}(\hat{a}_\ell\cos(\Omega_R t) + \frac{\hat{S}_+}{\sqrt{N}}\sin(\Omega_R t)) \end{aligned} \tag{6.23}$$

Il y a une fois de plus "oscillation de Rabi", à la fréquence $\Omega_R = \Omega_v\sqrt{N}$ entre les opérateurs $\hat{S}_+/\sqrt{N}$ et $\hat{a}_\ell$, mais il faut prendre garde que cette fréquence dépend maintenant, lorsque le système est peu excité, du nombre d'atomes, et pas du nombre de photons présents dans la cavité. En particulier, pour une impulsion π, c'est-à-dire à l'instant $t_1 = \pi/\Omega_R$, on a :

$$\frac{\hat{S}_+(t_1)}{\sqrt{N}} = -e^{-i\omega_0 t_1}\hat{a}_\ell \quad ; \quad \hat{a}_\ell(t_1) = e^{-i\omega_0 t_1}\frac{\hat{S}_+}{\sqrt{N}} \tag{6.24}$$

Il y a échange des propriétés quantiques entre le champ et les atomes. On a là une technique pour "écrire" dans les atomes les propriétés quantiques du champ, et aussi pour "lire" l'état quantique de l'assemblée d'atomes et la transcrire sur l'état du champ. Cette technique, et d'autres analogues, permet d'utiliser l'assemblée des atomes comme une *mémoire quantique* qui stocke les propriétés quantiques, les "communications quantiques" avec cette mémoire étant assurées par le mode de la cavité.

L'équation (6.24) montre que les opérateurs $\hat{S}_+/\sqrt{N}$ et $\hat{a}_\ell$ sont en quelque sorte interchangeables. Cette "interchangeabilité" est possible parce que les deux opérateurs ont les mêmes relation de commutation dans le cas où la proportion d'atomes excités est petite devant 1 :

$$\left[\frac{\hat{S}_+}{\sqrt{N}}, \frac{\hat{S}_-}{\sqrt{N}}\right] = \frac{2\hat{S}_z}{N} \simeq 1 = \left[\hat{a}_\ell, \hat{a}_\ell^\dagger\right] \tag{6.25}$$

Lorsque le vecteur de Bloch est proche de la position verticale, l'algèbre des états de l'assemblée d'atomes est donc la même que celles des états quantiques d'un mode unique du champ : on peut par exemple y définir de la même manière des états cohérents et des états comprimés, ou utiliser une approche du type fonction de Wigner pour les décrire.

7. SYSTÈMES A TROIS NIVEAUX

Il existe de nombreuses situations expérimentales où trois niveaux, et non pas seulement deux, se trouvent fortement peuplés. On accède alors à un grand nombre de phénomènes nouveaux. On peut rencontrer de nombreuses configurations possibles pour les trois niveaux, et les possibilités pour les champs électromagnétiques appliqués sont innombrables. On ne va dans ce chapitre qu'effleurer le domaine, et nous restreindre à quelques phénomènes parmi les plus importants.

1. Pompage optique

Imaginé par Kastler en 1949, c'est un moyen extrêmement simple de manipuler les populations de niveaux atomiques, ainsi que les cohérences, comme nous le verrons aussi plus loin, et de mettre les atomes dans une situation hors d'équilibre. La méthode trouve une des ses plus importantes applications dans les milieux lasers, où elle permet de réaliser des inversions de population.

1.1 Cas simple

Considérons trois niveaux $|a\rangle$, $|b\rangle$ et $|c\rangle$, dont deux proches, et un niveau beaucoup plus excité (voir figure 7.1). Par exemple, $|a\rangle$ et $|c\rangle$ sont les deux niveaux de structure hyperfine de l'état fondamental, et $|b\rangle$ et un niveau électronique excité. L'émission spontanée s'effectue de $|b\rangle$ vers $|a\rangle$ avec un taux Γ_{ba}, et de $|b\rangle$ vers $|c\rangle$ avec un taux Γ_{bc}. En revanche, elle est négligeable du niveau $|c\rangle$ vers $|a\rangle$. On se place dans la situation où le modèle d'Einstein est valable (γ_d grand, ou excitation en raie large). L'atome est excité avec un champ résonnant sur la transition $|b\rangle \to |c\rangle$. Les équations d'évolution des populations de l'atome s'écrivent alors :

$$\frac{dN_a}{dt} = +\Gamma_{ba} N_b + \frac{1}{2}\frac{\Omega_R^2}{\gamma_d}\left(N_b - N_a\right)$$

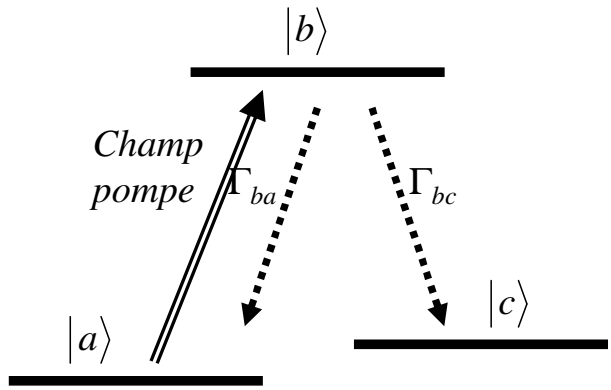

Fig. 7.1: configuration de niveaux pour le pompage optique

$$\begin{aligned}\frac{dN_c}{dt} &= \Gamma_{bc}N_b \\ \frac{dN_b}{dt} &= -\left(\Gamma_{ba}+\Gamma_{bc}\right)N_b - \frac{\Omega_R^2}{2\gamma_d}\left(N_b - N_a\right)\end{aligned}$$

où Ω_R est la pulsation de Rabi associée au champ appliqué. On trouve facilement le régime stationnaire atteint par le système :

$$N_a = 0 \qquad N_b = 0 \qquad N_c = 1$$

Toute la population se retrouve dans le niveau non atteint par le laser ! Ce résultat en apparence paradoxal a une explication simple : le niveau $|c\rangle$ est un *niveau piège*, ou "niveau réservoir" où le système arrive de temps en temps à cause de l'émission spontanée, mais *d'où il ne repart jamais*. On conçoit donc que si on attend suffisamment longtemps, l'atome se trouvera nécessairement "pompé" dans cet état.

On peut trouver l'équation d'évolution de l'état fondamental $|a\rangle$ en faisant l'hypothèse que la population de l'état $|b\rangle$ évolue beaucoup plus vite que celle de l'état $|a\rangle$. On peut alors *éliminer adiabatiquement* N_b des populations en faisant $\frac{dN_b}{dt} = 0$, comme nous l'avons déjà fait dans la partie 2.2. Il faudra s'assurer par la suite de la validité de cette hypothèse. On trouve alors :

$$\frac{dN_a}{dt} = -\Gamma_{pompage}N_a$$

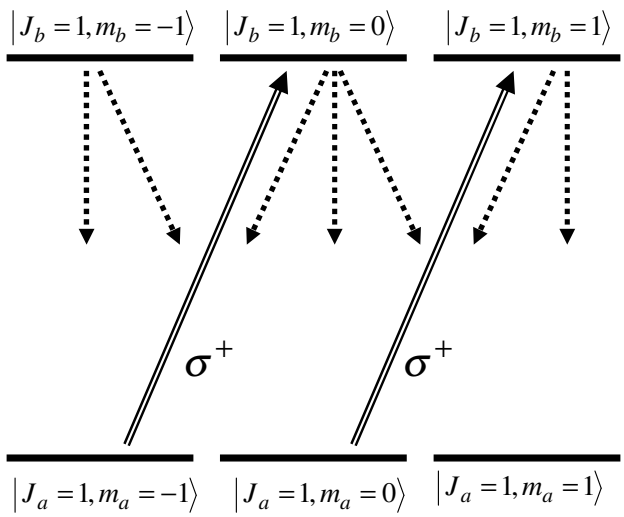

Fig. 7.2: pompage Zeeman dans la configuration $J_a = 1$, $J_b = 1$ en présence d'une onde polarisée σ^+

avec :

$$\Gamma_{pompage} = \frac{\Gamma_{bc}}{\Gamma_{ba} + \Gamma_{bc} + \frac{\Omega_R^2}{2\gamma d}} \frac{\Omega_R^2}{2\gamma_d} \approx \frac{\Gamma_{bc}}{\Gamma_{ba} + \Gamma_{bc}} \frac{\Omega_R^2}{2\gamma_d}$$

Le taux de pompage optique $\Gamma_{pompage}$ est donc proportionnel à la puissance incidente. Cette approche est juste si $\Gamma_{pompage} \ll \Gamma_{ba} + \Gamma_{bc}$, mais aussi si $\Gamma_{pompage} \gg \Gamma_{ca}$, où Γ_{ca} est le taux de relaxation du niveau $|c\rangle$ vers le niveau $|a\rangle$, dû à l'effet perturbateur de l'environnement, puisque l'émission spontanée est négligeable sur cette transition. Une conséquence du pompage optique est que $N_a - N_b = 0$: le système devient transparent pour l'onde appliquée.

Le pompage optique peut être un phénomène utile, puisqu'il permet de peupler efficacement un niveau, ou gênant, puisqu'il stoppe l'interaction entre le champ appliqué et la transition avec lequel il est résonnant. Pour le contre-carrer, il suffit de faire en sorte que le niveau $|c\rangle$ ne soit plus piège. On peut en particulier ajouter un faible faisceau lumineux, dit "repompeur", sur la transition $|b\rangle \leftrightarrow |c\rangle$, qui "recycle" la population de $|c\rangle$.

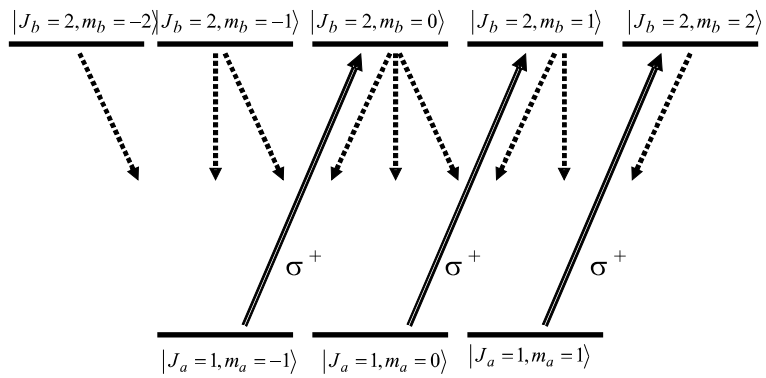

Fig. 7.3: pompage Zeeman dans la configuration $J_a = 1$, $J_b = 2$ en présence d'une onde polarisée σ^+

1.2 Pompage Zeeman

Un cas souvent rencontré est celui où les deux niveaux $|a\rangle$ et $|b\rangle$ sont des niveaux atomiques de mouvement cinétique J_a, J_b, qui ont donc $(2J+1)$ sous-niveaux Zeeman dégénérés en l'absence de champ magnétique.

Prenons tout d'abord comme exemple le cas $J_a = J_b = 1$ (figure 7.2). On ne peut pas ici séparer ces sous-niveaux par des conditions de résonance avec un champ appliqué, car ils sont dégénérés. Par contre, en choisissant un champ appliqué de polarisation circulaire σ^+ par rapport à un axe Oz donné, les *règles de sélection* imposent la contrainte $\Delta m = +1$ pour les transitions possibles (les sous-niveaux Zeeman étant définis comme états propres de $\hat{J}_z$ par rapport à ce même axe $0z$). Si l'atome est initialement à l'équilibre thermodynamique, les trois sous-niveaux du niveau fondamental sont peuplés également, donc $\langle J_z \rangle = 0$. Le champ polarisé circulairement va peupler dans l'état excité les sous-niveaux $|b; m = 0\rangle$ et $|b; m = 1\rangle$. L'émission spontanée s'effectue avec des photons de polarisation quelconque, donc avec $\Delta m = 0 \pm 1$. On voit sur la figure (7.2) que le sous-niveau $|a; m = 1\rangle$ *est un niveau piège*. Au bout d'un temps $\Gamma^{-1}_{pompage}$, l'atome va se trouver porté dans l'état $|a; m = 1\rangle$, caractérisé en particulier par son moment cinétique $\langle J_z \rangle = \hbar$. La lumière de polarisation circulaire σ^+ que l'on a utilisée ayant un mouvement cinétique non nul, on voit que le pompage optique a *transféré du moment cinétique* du rayonnement à l'atome.

Plaçons nous maintenant dans le cas d'une transition $J_a = 1, J_b = 2$ (figure 7.3), toujours en présence d'une onde polarisée circulairement σ^+. On

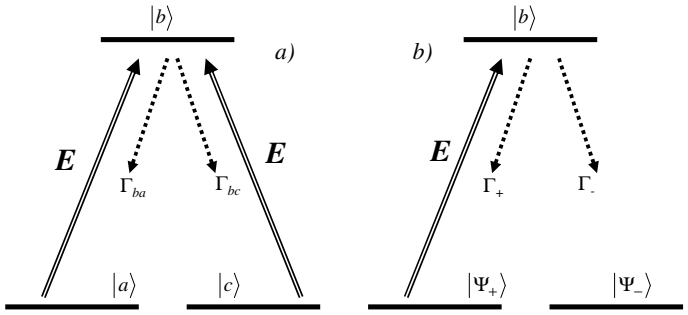

Fig. 7.4: configuration de niveaux pour le piégeage cohérent de population : a) dans la base des états atomiques usuels ; b) dans la base des états couplés et non couplés

voit alors aisément qu'au bout du temps de pompage, le système sera dans le sous-espace sous-tendu par les états $|a; m = 1\rangle$ et $|b; m = 2\rangle$: il n'y a plus un seul état piège, mais deux. Cette configuration permet donc d'*isoler un système à deux niveaux* en présence de nombreux autres niveaux de même énergie. Elle est très souvent utilisée par les expérimentateurs, qui disposent rarement de véritables systèmes à deux niveaux "naturels".

2. Piégeage cohérent de population

Ce phénomène de manipulation des cohérences est aussi appelé phénomène de "résonance noire".

2.1 Cas de deux niveaux dégénérés

Considérons la configuration de la figure (7.4a), où $|a\rangle$ et $|c\rangle$ sont par exemple deux sous-niveaux Zeeman, donc de même énergie en champ magnétique nul. On utilisera les notations :

$$\begin{aligned} \langle a| \overrightarrow{D}.\overrightarrow{\varepsilon} |b\rangle &= d_{ab} \\ \langle c| \overrightarrow{D}.\overrightarrow{\varepsilon} |b\rangle &= d_{cb} \end{aligned}$$

où $\overrightarrow{\varepsilon}$ est le vecteur polarisation du champ utilisé. On peut introduire les états quantiques :

$$|\Psi_{\pm}\rangle = \frac{(d_{cb}^{*}|a\rangle \pm d_{ab}^{*}|c\rangle)}{\sqrt{|d_{cb}|^{2}+|d_{ab}|^{2}}} \tag{7.1}$$

On a alors :

$$\begin{aligned}\langle\Psi_{+}|\overrightarrow{D}.\overrightarrow{\varepsilon}|b\rangle &= \frac{2d_{ab}d_{cb}}{\sqrt{|d_{ab}|^{2}+|d_{cb}|^{2}}}\\ \langle\Psi_{-}|\overrightarrow{D}.\overrightarrow{\varepsilon}|b\rangle &= 0\end{aligned}$$

L'état $|\Psi_{-}\rangle$ n'est donc pas couplé au champ appliqué. On peut alors redessiner la configuration des niveaux en changeant de base (figure (7.4b)). Les taux de désexcitation par émission spontanée de $|b\rangle$ vers $|\Psi_{+}\rangle$ et $|\Psi_{-}\rangle$, Γ_{+} et Γ_{-}, sont tous deux a priori différents de zéro, car il n'y a pas annulation de l'élément de matrice dipolaire pour toutes les polarisations possibles du photon spontané. On se retrouve donc dans la situation du pompage optique décrite au début de ce chapitre, avec un état non couplé au champ appliqué. Au bout du temps de pompage, le système est porté dans l'état $|\Psi_{-}\rangle$ qui n'interagit plus avec le champ, donc un état "piège". On a donc créé dans le régime stationnaire une *superposition cohérente bien définie* des deux niveaux inférieurs. D'autre part, lorsqu'il est dans cet état, le système n'interagit plus avec le champ, et il ne fluorescence donc plus : d'où sa dénomination d'"état noir".

2.2 Cas de deux niveaux non dégénérés

Si les deux niveaux inférieurs ne sont plus de même énergie, les états $|\Psi_{+}\rangle$ et $|\Psi_{-}\rangle$ ne sont plus stationnaires. En particulier :

$$|\Psi_{-}(t)\rangle = \frac{1}{\sqrt{|d_{cb}|^{2}+|d_{ab}|^{2}}}\left(d_{cb}^{*}e^{-iE_{a}\frac{t}{\hbar}}|a\rangle - d_{ab}^{*}e^{-iE_{c}\frac{t}{\hbar}}|c\rangle\right) \tag{7.2}$$

La phase relative des deux composantes de l'état évolue en $e^{i(E_a-E_c)\frac{t}{\hbar}} = e^{i\omega_{ac}t}$. Lorsque $t = t_0 = \frac{\pi}{\omega_{ac}}$, alors il y a changement de signe, et le système se retrouve dans l'état $|\Psi_{-}(t_0)\rangle = |\Psi_{+}\rangle$. Il est donc à nouveau couplé à la lumière, et n'est donc plus noir. Une analyse plus détaillée du phénomène montre qu'en fait il y a concurrence entre le pompage vers le niveau piège

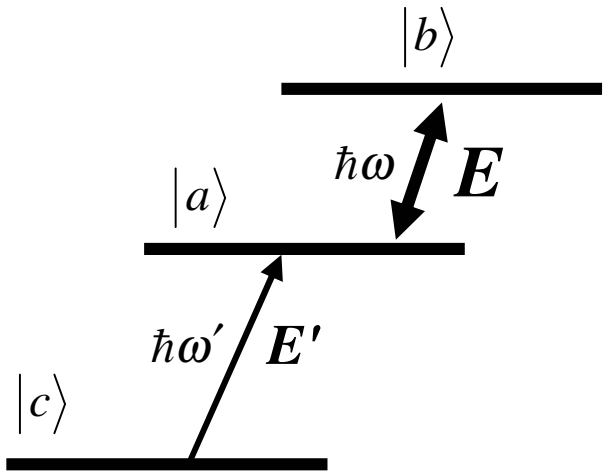

Fig. 7.5: configuration des niveaux permettant de mettre en évidence les déplacements lumineux

et déphasage dû à la levée de dégénérescence. Elle permet de calculer les populations stationnaires, non nulles toutes deux et fortement différentes, des deux sous-niveaux $|\Psi_+\rangle$ et $|\Psi_-\rangle$.

3. Déplacements lumineux

De la même manière que la matière perturbe la lumière, en modifiant sa vitesse (c'est l'effet d'indice), la lumière perturbe la matière, en modifiant ses niveaux d'énergie : c'est le phénomène de *déplacement lumineux* (ou "light shift"), intimement lié au précédent. On peut aussi voir le light shift comme l'extension à un champ non nul du Lamb shift dû au couplage avec le vide de rayonnement.

Pour mettre en évidence cet effet, on va se placer dans la configuration simple de la figure (7.5), dite "configuration en échelle". On applique un champ intense, ou champ pompe, de fréquence fixe ω, sur la transition $|a\rangle \to |b\rangle$, avec $\omega - \omega_0 = \delta$ faible, et un champ faible, ou champ sonde, sur la transition $|c\rangle \to |a\rangle$, dont on balaie la fréquence ω' pour trouver les résonances du système. On suppose en outre que les fréquences de Bohr ω_{ba} et ω_{ac} sont très différentes l'une de l'autre.

3.1 Approche quantique : doublet Autler-Townes

A l'ordre 0 par rapport au champ sonde, les états propres du système (atome + champ pompe + champ sonde) sont :

- $|c; n, n'\rangle$, où n est le nombre de photons dans le mode p du champ pompe, et n' le nombre de photons dans le mode s du champ sonde, supposés tous deux décrits, pour simplifier les calculs, par des états nombres ;

- $|\Psi_{\pm n}, n'\rangle$, où $|\Psi_{\pm n}\rangle$ sont les états habillés résultant de l'interaction quasi-résonnante entre le champ pompe et les états atomiques $|a\rangle$ et $|b\rangle$. A l'ordre zéro de perturbation, le champ sonde ne perturbe évidemment pas les niveaux avec lesquels il interagit.

A l'ordre 1 par rapport au champ sonde, le terme de perturbation, qui s'écrit :

$$iD_{ac}\left(-\widehat{a}_s\,|a\rangle\,\langle c| + |c\rangle\,\langle a|\,\widehat{a}_s^+\right)$$

pourra induire des transitions entre états couplés par cette perturbation, c'est-à-dire entre $|c; n, n'\rangle$ et $|\Psi_{\pm n}, n'-1\rangle$ (car $|c\rangle$ est en dessous de $|a\rangle$). Cette transition se fait à énergie constante, donc :

$$E_c + n\hbar\omega + n'\hbar\omega' = n\hbar\omega + \hbar\left(-\frac{\delta}{2} \pm \frac{1}{2}\sqrt{n\Omega_v^2 + \delta^2}\right) + (n'-1)\,\hbar\omega' + E_a \quad (7.3)$$

La probabilité de ces transitions, donc l'intensité des raies, sera proportionnelle aux carrés des éléments de matrice correspondants, soit

$$\left|\langle c|\,\overrightarrow{D}\,|a\rangle\right|^2 |\langle a_n|\,\Psi_{\pm n}\rangle|^2 \quad (7.4)$$

L'intensité de la transition sera donc proportionnelle à $\cos^2\theta_n$ pour une fréquence de champ sonde $\omega' = \omega_{ac} - \frac{\delta}{2} + \frac{1}{2}\sqrt{n\Omega_v^2 + \delta^2}$, et à $\sin^2\theta_n$ pour une fréquence de champ sonde $\omega' = \omega_{ac} - \frac{\delta}{2} - \frac{1}{2}\sqrt{n\Omega_v^2 + \delta^2}$. Rappelons que $n\Omega_v^2 = \Omega_R^2$ n'est autre que la pulsation de Rabi obtenue dans l'approche semi-classique. La configuration que nous venons d'étudier permet donc de faire directement la spectroscopie des niveaux de l'atome habillé.

Considérons le cas particulier simple où le champ pompe est résonnant : $\delta = 0$, donc $\theta_n = \frac{\pi}{4}$. On a alors deux transitions de même intensité, situées en $\omega' = \omega_{ac} \pm \frac{1}{2}\Omega_R$. C'est le *doublet Autler-Townes*, manifestation directe de "l'habillage" de l'atome par le champ perturbateur. Signalons qu'on aurait pu aussi calculer la position de ces deux raies en résolvant les équations de Bloch pour le système à trois niveaux, en traitant à tous les ordres l'interaction avec le champ pompe, et au premier ordre l'interaction avec le champ sonde.

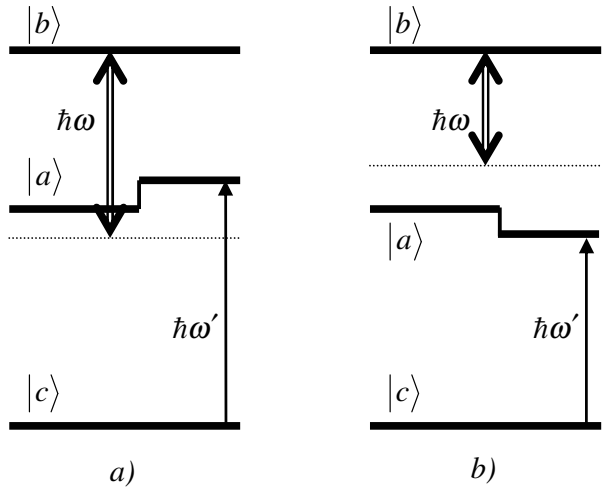

Fig. 7.6: le niveau atomique est "repoussé" par le "niveau virtuel" distant de $\hbar\omega$ de l'autre niveau

3.2 Limite perturbative pour le déplacement lumineux

Plaçons-nous maintenant dans le cas $\Omega_R \ll \delta$. Alors $\theta_n \approx -\frac{\Omega_R}{2\delta} \ll 1$. les deux raies sont alors très dissymétriques : La raie correspondant au signe plus a pour poids 1, et la raie correspondant au signe moins a une intensité relative $\frac{\Omega_R^2}{4\delta^2}$, donc très faible. On n'observe donc pratiquement qu'une raie, et non plus un doublet, de fréquence :

$$\hbar\omega' = \left(E_a + \frac{\hbar\Omega_R^2}{4\delta}\right) - E_c \tag{7.5}$$

Tout se passe comme si le niveau $|a\rangle$ était déplacé sous l'effet du champ (non saturant, donc faible ou fortement non-résonnant) interagissant avec la transition $|a\rangle \to |b\rangle$. Ce niveau a donc subi le déplacement lumineux :

$$\Delta E_a = \frac{\hbar\Omega_R^2}{4\left(\omega - \omega_0\right)} = \frac{d_{ab}^2 E^2}{4\left(\omega - \omega_0\right)} \tag{7.6}$$

Le signe de ce déplacement peut être déterminé en faisant le schéma de la figure (7.6) : on constate que le niveau "virtuel" d'énergie $E_b - \hbar\omega$

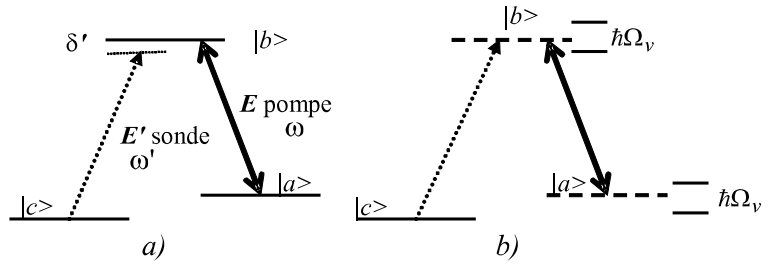

Fig. 7.7: a) configuration des niveaux d'énergie et des champs. b)interprétation de la transparence électromagnétiquement induite en termes de niveaux de l'atome habillé

"repousse" toujours le niveau $|a\rangle$. Remarquons qu'il ne faut pas confondre ce déplacement de la transition avec le déplacement de Bloch-Siegert, calculé au paragraphe (4.3) du chapitre 6, dû à l'existence de termes anti-résonnants dans l'hamiltonien, et qui est beaucoup plus petit car il y a seulement ω_0 au dénominateur, et non pas $\omega - \omega_0$.

3.3 Approche par les équations de Bloch

Là aussi, les effets trouvés précédemment ne sont pas spécifiquement quantiques. Ils existent aussi quand les deux champs sont cohérents et comportent un grand nombre de photons. On peut alors les décrire par les équations de Bloch, généralisées au cas de trois niveaux et deux champs incidents. Nous nous intéressons ici à la configuration de niveaux et de champs de la figure 7.7a), dite "configuration en lambda", où les niveaux $|a\rangle$ et $|c\rangle$ sont deux niveaux proches, et le niveau $|b\rangle$ est beaucoup plus excité. Le champ intense est sur la transition $|a\rangle \to |b\rangle$, et le champ sonde faible peuple le niveau $|b\rangle$ à partir du fondamental $|c\rangle$. L'hamiltonien d'interaction s'écrit dans ce cas :

$$H_{int} = -dE\cos\omega t\,(|a><b| + |b><a|) - d'E'\cos\omega' t\,(|c><b| + |b><c|) \tag{7.7}$$

On supposera pour simplifier que le champ E intense ("champ pompe") est strictement résonnant avec la transition $|a> \longrightarrow |b>$, et que le champ E', beaucoup plus faible ("champ sonde"), est de fréquence ω' variable au voisinage de la résonance avec la transition $|c> \longrightarrow |b>$. On pourra alors se contenter de résoudre perturbativement le problème, en ne conservant que les termes d'ordre le plus bas en E'. La matrice densité est maintenant de

dimension 3×3 : il y a une population de plus (ρ_{cc}), et deux cohérences : la cohérence ρ_{cb}, excitée par le champ sonde E', et la cohérence ρ_{ca}, qui joue un rôle important dans ce problème, et se construit à partir de processus à deux photons de type Raman qui font intervenir en même temps les deux champs appliqués à l'atome.

En calculant les commutateurs, il est facile de voir que les équations de Bloch s'écrivent dans la configuration que nous étudions, et en supposant que la relaxation est purement due à l'émission spontanée, sous la forme :

$$\begin{aligned}
\frac{d}{dt}\rho_{aa} &= \Gamma\rho_{bb} + \Omega_R Im\widetilde{\rho}_{ba} \\
\frac{d}{dt}\rho_{bb} &= -(\Gamma+\Gamma')\rho_{bb} - \Omega_R Im\widetilde{\rho}_{ba} - \Omega'_R Im\widetilde{\rho}_{bc} \\
\frac{d}{dt}\rho_{cc} &= \Gamma'\rho_{bb} + \Omega'_R Im\widetilde{\rho}_{bc} \\
\frac{d}{dt}\widetilde{\rho}_{ba} &= -\frac{\Gamma}{2}\widetilde{\rho}_{ba} + i\frac{\Omega_R}{2}\left(\rho_{bb}-\rho_{aa}\right) + i\frac{\Omega'_R}{2}\widetilde{\rho}_{ca} \\
\frac{d}{dt}\widetilde{\rho}_{bc} &= -\left(\frac{\Gamma'}{2}+i\delta'\right)\widetilde{\rho}_{bc} + i\frac{\Omega'_R}{2}\left(\rho_{cc}-\rho_{bb}\right) + i\frac{\Omega_R}{2}\widetilde{\rho}_{ac} \\
\frac{d}{dt}\widetilde{\rho}_{ca} &= -i\delta'\widetilde{\rho}_{ca} + i\frac{\Omega_R}{2}\widetilde{\rho}_{cb} - i\frac{\Omega'_R}{2}\widetilde{\rho}_{ba}
\end{aligned}$$

avec $\Omega_R = -dE/\hbar$, $\Omega'_R = -d'E'/\hbar$, $\delta' = \omega' - \omega_{bc}$. On a évidemment à tout instant $\rho_{aa} + \rho_{bb} + \rho_{cc} = 1$. Remarquons que les équations relatives aux cohérences ρ_{ba} et ρ_{bc} ne sont pas simplement la juxtaposition des termes relatifs à une transition, excitée par le champ E, et à l'autre, excitée par le champ E'. Il s'y rajoute le dernier terme, qui fait intervenir la "cohérence Raman" ρ_{ca}, dont la dernière équation nous montre qu'elle a un taux de relaxation nul. En effet les niveaux $|c>$ et $|a>$ sont très proches l'un de l'autre, et le taux de desexcitation spontanée est négligeable sur cette transition.

La solution stationnaire de cette équation est quelque peu complexe à écrire dans le cas général. Nous la résoudrons uniquement de manière perturbative par rapport au champ E' : tout d'abord à tous les ordres en E en supposant $E' = 0$, puis au premier ordre en E'. Dans le cas simple où $\Gamma = \Gamma'$, on trouve en particulier que le taux d'absorption sur le champ E', proportionnel à $Im\widetilde{\rho}_{bc}$, est proportionnel à la quantité A_{bc}, qui vaut :

$$A_{bc} = \frac{\Gamma^2\delta'^2}{\Gamma^2\delta'^2 + 4(\delta'^2 - \Omega_R^2/4)^2} \tag{7.8}$$

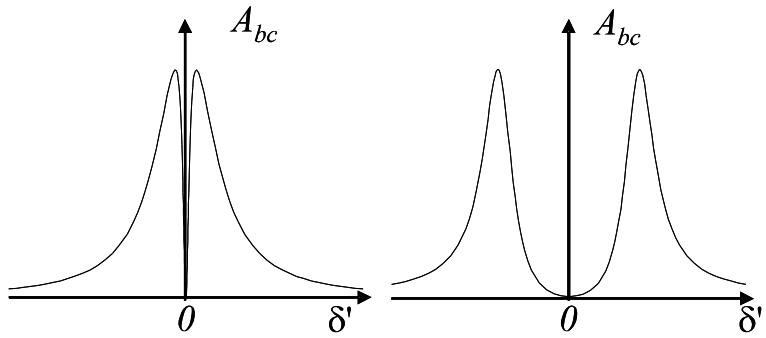

Fig. 7.8: coefficient d'absorption d'un faible champ sonde sur la transition bc en présence d'un champ saturant sur la transition ab en fonction de la fréquence du champ sonde

Dans le cas d'un champ pompe saturant, où $\Omega_R \gg \Gamma$, la contribution du premier terme du dénominateur est négligeable. On trouve alors qu'on a deux pics de résonance dans l'absorption , obtenus pour $\delta' = \pm\Omega_R/2$: on retrouve bien le doublet Autler-Townes, avec la forme exacte de la raie d'absorption.

Un calcul simple nous permet de trouver à partir des équations de Bloch, dans la limite opposée $\Omega_R \ll \Gamma$, l'expression détaillée du Lamb-shift :

$$\Delta E_a = \frac{\hbar\Omega_R^2}{4}\frac{\omega - \omega_0}{(\omega - \omega_0)^2 + \Gamma^2/4} \tag{7.9}$$

Cette expression est celle d'un *phénomène de dispersion*, très analogue à celle de la variation de l'indice d'un milieu atomique, ce qui corrobore le lien fort entre ces deux phénomènes.

3.4 Transparence électromagnétiquement induite

La variation du taux d'absorption de l'atome en fonction de δ' est donnée sur la figure(7.8) pour deux valeurs croissantes de la fréquence de Rabi. On remarque pour la plus forte intensité deux pics Autler-Townes bien séparés, qui se confondent à plus basse intensité. On remarque aussi que dans tous les cas l'absorption s'annule pour $\delta' = 0$ (l'expression précédente montre que que $A_{bc}(\delta' = 0) = 0$). On constate ainsi que, pour toute puissance pompe, *il n'y a pas d'absorption lorsque les deux champs sont à résonance exacte sur les deux transitions.* Ce phénomène, tout-à-fait paradoxal a priori puisqu'à la résonance exacte correspond en général un maximum d'absorption et

non pas un zéro, est appelé "transparence électromagnétiquement induite" (Electromagnetically Induced Transparency : EIT). Il est très analogue au phénomène de résonance noire décrit plus haut, mais induit entre des niveaux d'énergie différente sous l'effet d'un champ saturant extérieur qui crée les deux bandes latérales d'absorption de Rabi.

L'annulation de l'absorption exactement au milieu de ces deux maxima se comprend en utilisant le modèle de l'atome habillé (figure 7.7b). Les niveaux $|a>$ et $|b>$ sont "habillés" par le champ pompe et se dédoublent. L'absorption par le champ sonde implique des cycles d'émission et d'absorption via les niveaux habillés $|\Psi_+>$ et $|\Psi_->$, sans qu'on puisse distinguer entre les deux chemins possibles. Il faut donc ajouter les amplitudes et non les probabilités des deux processus. Lorsque $\delta' = 0$, les amplitudes sont égales et interfèrent destructivement.

On a ici un exemple supplémentaire du fait que l'approche quantique est utile en dehors de son "domaine réservé" de validité, c'est-à-dire dans des configurations où l'approche semi-classique est a priori suffisante pour décrire les phénomènes. Les énergies propres et les états stationnaires pour le système global atome+champ qu'elle permet d'introduire permettent en effet de mieux comprendre des phénomènes purement semi-classiques, mais qui sont difficiles à extraire du formalisme des équations de Bloch, formées d'un grand nombre d'équations différentielles couplées.

3.5 Réduction de la vitesse de propagation d'une impulsion lumineuse

Le modèle précédent permet aussi de déterminer l'indice de refraction pour le champ E', qui est proportionnel à $Re\widetilde{\rho}_{bc}$, et qui est représenté en fonction de δ' sur la figure(7.9). On remarque une très rapide variation de l'indice au voisinage de $\delta' = 0$, c'est-à-dire dans la région de transparence électromagnétiquement induite. Si on se rappelle que la vitesse de propagation d'une impulsion lumineuse (vitesse de groupe v_g) est donnée par l'expression :

$$v_g = \frac{c}{n + \omega dn/d\omega} \tag{7.10}$$

on voit que v_g peut être très faible dans les régions où $dn/d\omega$ est très grand. Comme il s'agit d'une région où le milieu est transparent, l'impulsion n'est pas absorbée et l'effet de ralentissement de l'impulsion peut être mesuré.

La figure 7.10 donne le résultat d'une expérience effectuée sur un ensemble dense d'atomes de sodium froids (en fait, un condensat de Bose-Einstein, mais

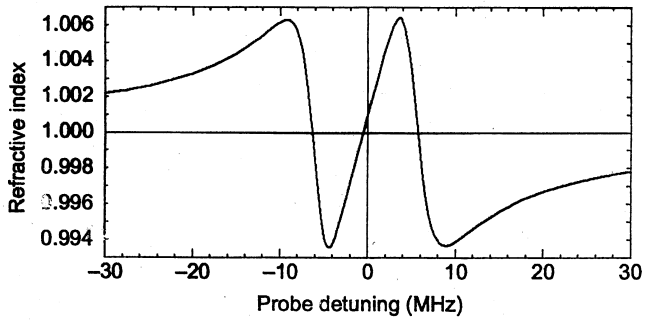

Fig. 7.9: variation de l'indice de réfraction vu par le champ sonde sur la transition bc en présence d'un champ saturant sur la transition ab (calcul fait dans les condition exactes de l'experience de la figure 7.10, et qui impliquent l'existence d'un léger déplacement de la résonance par rapport au désaccord nul)

la condensation en elle-même ne joue ici aucun rôle) soumis à une onde intense sur la transition $|3S_{1/2}, F = 2, m_F = -2 >\rightarrow |3P_{3/2}, F = 2, m_F = -2 >$, et à une impulsion de lumière peu intense sur la transition $|3S_{1/2}, F = 1, m_F = -1 >\rightarrow |3P_{3/2}, F = 2, m_F = -2 >$ (L.V. Hau, S. Harris, Z. Dutton, C. Behroozi, Nature **397**, 594 (1999)). Elle permet de comparer cette impulsion après traversée du milieu perturbé par l'onde intense à la même impulsion enregistrée dans les mêmes conditions, mais en l'absence de champ intense. On constate un retard de $7\mu s$, entre elles, ce qui permet de déterminer que la vitesse de propagation de l'impulsion dans le milieu n'est que de $32ms^{-1}$! On voit donc que dans ces conditions extrêmes, le ralentissement de l'impulsion peut être extrêmement spectaculaire.

4. *Sauts quantiques*

La théorie semi-classique ne donne l'évolution que des moyennes quantiques $\left\langle \overrightarrow{D} \right\rangle$, ou $\left\langle \overrightarrow{E} \right\rangle$. Dans la plupart des expériences, on n'effectue pas les mesures sur un seul système quantique, mais sur un ensemble formé d'un grand nombre d'atomes identiques, interagissant avec le même champ. L'observation du système "macroscopique" correspond alors bien à la moyenne quantique. Il n'en est plus de même lorsqu'on observe un atome unique (ou un ion, ou un photon) : on a alors accès à *une réalisation*, différente à chaque

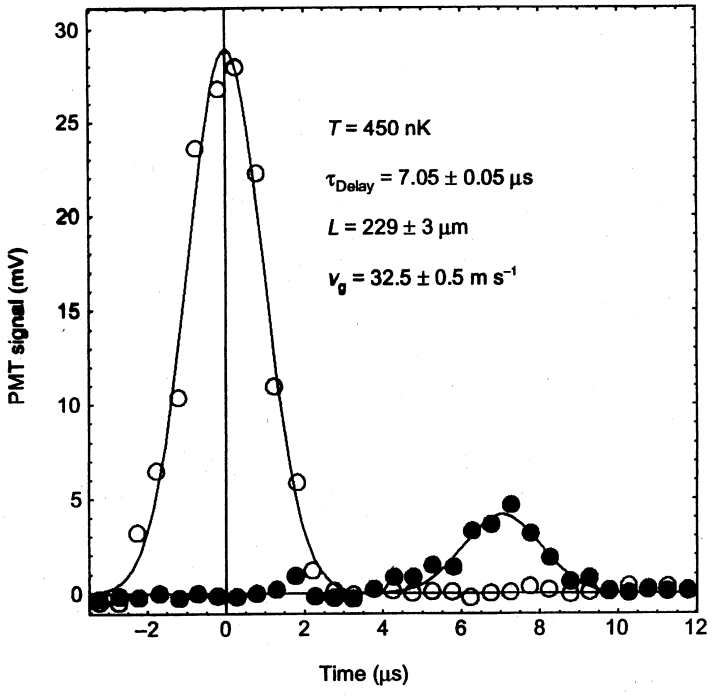

Fig. 7.10: propagation d'une impulsion lumineuse à travers un milieu dans les conditions de transparence électromagnétiquement induite : cercles blancs : sans onde intense. cercles noirs : en présence de l'onde saturante

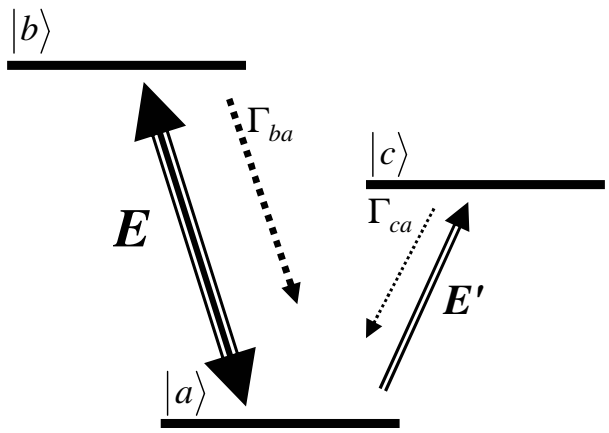

Fig. 7.11: configuration de niveaux pour observer les sauts quantiques par l'interruption de la fluorescence du niveau supérieur

mesure. La théorie semi-classique ne donne que peu de renseignements sur celle-ci, si ce n'est la moyenne qu'on trouvera après avoir réalisé un grand nombre d'expériences identiques sur le même atome.

Les physiciens se sont posés depuis longtemps la question suivante : lorsqu'un atome effectue une transition de $|a\rangle$ à $|b\rangle$ sous l'effet du rayonnement, l'effectue-t-il instantanément, ou passe-t-il de manière transitoire par un état intermédiaire ? Les mesures sur un grand nombre d'atomes ne permettent évidemment pas de répondre à cette question, mais des expériences réalisées sur un ion unique, piégé par une structure de champ, ont permis de montrer la réalité physique de ces *sauts quantiques* d'un niveau atomique à un autre.

L'expérience est schématisée sur la figure () : on considère un schéma de niveaux "en V", et on applique sur l'ion un champ pompe intense et résonnant sur la transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$, qui induit une forte fluorescence, facilement observable même si elle est émise par un ion unique, car elle produit $\frac{\Gamma_{sp}}{2}$ photons par seconde. On applique aussi un deuxième champ très faible (par exemple une lampe lampe classique de faible intensité), qui est susceptible d'induire des transitions de $|a\rangle$ vers un niveau $|c\rangle$ de très longue durée de vie. L'intensité de la sonde est choisie de telle sorte que la probabilité de transition $P_{a\rightarrow c}$ est très faible. Deux situations sont alors possibles :

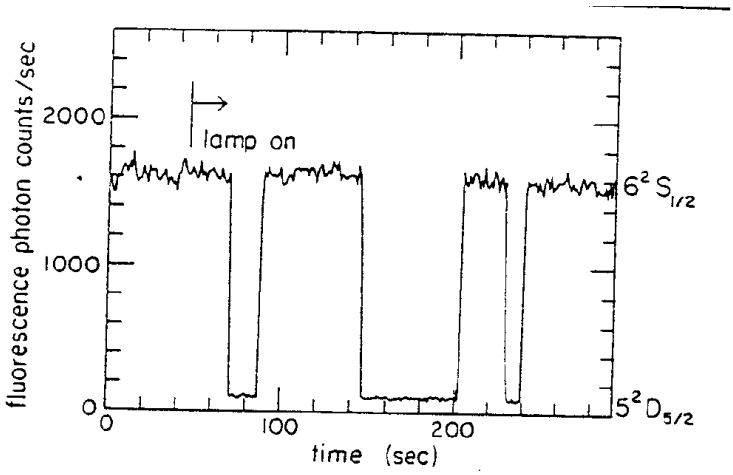

Fig. 7.12: signal de fluorescence observé sur un ion unique

- L'ion est en $|a\rangle$. Le champ pompe provoque alors un grand nombre de cycles $|a\rangle \leftrightarrow |b\rangle$: il se produit une forte fluorescence, aisément mesurable.

- L'ion a été porté par le champ faible dans le niveau $|c\rangle$. La fluorescence intense est interrompue, jusqu'à ce que l'atome retombe par émission spontanée dans le niveau fondamental, où il reprend ses cycles d'absorption-émission.

On peut ainsi *voir en direct* la transition $|a\rangle \to |c\rangle$ sur la fluorescence du niveau $|b\rangle$. La figure (7.12) donne le signal observé (W. Nagourney et al, Phys. Rev. Letters **56**, 2797 (1986)) sur un ion unique piégé de Ba^+. On observe des transitions instantanées, aux imperfections expérimentales près : l'atome est soit en $|a\rangle$ soit en $|c\rangle$, avec des phases d'interruption de fluorescence qui nous renseignent sur la statistique des temps de séjour dans le niveau excité de très longue durée de vie (30 s dans le cas de cette expérience !). S'il y avait beaucoup d'atomes, on verrait en allumant le champ très faible une baisse de l'intensité de fluorescence égale à $\frac{1}{2}P_{a\to c} \times I_{fluorescence}$, qui est très faible, alors que l'effet est total sur une réalisation unique.

Si on trace l'histogramme des durées d'interruption de la fluorescence du niveau $|b\rangle$, on trouve un comportement exponentiel correspondant à une durée de vie de 30s, qui est bien la durée de vie du niveau $|c\rangle$. La théorie quantique ne permet pas de prédire ce qui se passe pour une réalisation donnée de l'expérience, mais en revanche elle permet de prédire précisément les caractéristiques de la distribution de probabilité des périodes d'absence de

fluorescence. On voit sur cet exemple que la valeur moyenne d'une grandeur quantique ne renseigne pas, loin s'en faut, sur l'ensemble des propriétés du système dès lors qu'on s'intéresse à un objet quantique unique, ou à un petit nombre de tels objets. L'étude des fluctuations autour de la valeur moyen, ainsi que celle des corrélations entre mesures va faire l'objet du prochain chapitre.

8. FLUCTUATIONS ET CORRELATIONS QUANTIQUES

1. *Introduction*

Les précédents chapitres nous ont appris à calculer les valeurs moyennes des observables de l'atome et du champ dans la plupart des situations. Mais ces quantités ne renferment pas toute la physique du problème, comme nous venons de le voir dans le cas des sauts quantiques, où chaque réalisation individuelle diffère beaucoup de la moyenne. Les cas individuels ne sont pas accessibles à la prédiction rigoureuse en physique quantique, mais on obtiendra des renseignements supplémentaires sur le système si on s'intéresse à l'*écart à la valeur moyenne* :

- sur une grandeur $\hat{A}$ donnée, pour laquelle on introduira l'opérateur fluctuation :
$$\delta\hat{A} = \hat{A} - \langle A \rangle \tag{8.1}$$
dont la variance donne une idée des *fluctuations* autour de la moyenne, donc sur la précision avec laquelle on pourra mesurer cette quantité ;
- sur deux grandeurs $\hat{A}$ et $\hat{B}$, pour laquelle on introduira l'opérateur corrélation :
$$\hat{C}_{A,B} = \frac{1}{2}(\delta\hat{A}\delta\hat{B} + \delta\hat{B}\delta\hat{A}) \tag{8.2}$$
dont la valeur moyenne donne une idée des *corrélations* qui existent entre les mesures faites sur ces deux quantités.

Ces corrélations constituent un des points les plus intriguants de la physique quantique, puisqu'on sait que dans certains cas, elles ont un *caractère non local* et sont irréductibles à toute compréhension basée sur des concepts classiques de corrélation [**?**].

Nous allons nous contenter dans ce chapitre de donner quelques exemples de calcul de fluctuations et de corrélations quantiques dans l'interaction matière-rayonnement. Ces exemples nous permettront d'introduire les techniques essentielles de traitement de ces problèmes. Ils nous révèleront aussi

quelques phénomènes intéressants, qui ont fait l'objet d'expériences marquantes en optique quantique.

2. Fluctuations dans l'interaction d'un système à deux niveaux avec un champ en l'absence de dissipation

2.1 Position du problème

On revient sur la configuration de champ aboutissant aux franges de Ramsey, qui a été étudiée dans le paragraphe (6.2.2), et qui a une grande importance, en particulier parce qu'elle est utilisée dans les horloges atomiques, qui permettent de réaliser concrètement l'unité de temps et de fréquence. Rappelons qu'on applique sur le système à deux niveaux dont on veut repérer avec la plus grande précision possible la fréquence de résonance ω_0 un champ de fréquence ω sous la forme de deux impulsions $\pi/2$ séparées par un "temps mort" de durée T. Les deux niveaux sont supposés de durée de vie infinie.

On a vu en particulier que le nombre moyen d'atomes se trouvant dans l'état excité à l'issue de la séquence d'impulsions est donnée, au voisinage immédiat de la résonance, par :

$$\langle \hat{N}_b \rangle = \frac{1}{2}(1 + cos(\omega - \omega_0)T) \tag{8.3}$$

Ce signal est maximum à résonance exacte, mais ne constitue pas un "signal d'erreur" susceptible d'être utilisé pour asservir la fréquence de la source de rayonnement sur la transition, car si la source n'est pas exactement à résonance, la valeur de $\langle \hat{N}_b \rangle$ ne permet pas de savoir quel est le signe du désaccord, et donc d'appliquer de signal de correction adéquat. Pour obtenir un tel signal d'erreur, il faut faire une mesure différentielle : une méthode possible est d'appliquer successivement deux séquences d'impulsion, la première à la fréquence $\omega + \delta_1$, l'autre à la fréquence $\omega - \delta_1$, où δ_1 est une fréquence ajustable, et de faire la différence des deux mesures successives de $\langle \hat{N}_b \rangle$. On obtient un nouveau signal N_M qui vaut :

$$\begin{aligned} N_M &= \langle \hat{N}_b(\omega + \delta_1) \rangle - \langle \hat{N}_b(\omega + \delta_1) \rangle \\ &= sin(\omega - \omega_0)T sin\delta_1 T \simeq (\omega - \omega_0)T sin\delta_1 T \end{aligned}$$

qui s'annule à résonance exacte et change de signe en même temps que le désaccord à résonance. On constate que ce signal est maximum pour

$\delta_1 T = \pi/2$. La précision avec laquelle on déterminera la résonance exacte va être évidemment limitée par le "bruit" affectant cette mesure. Celui-ci a de nombreuses origines, liées essentiellement aux imperfections inévitables du montage expérimental. L'essentiel du travail du physicien métrologiste est de réduire ces imperfections. Lorsqu'il réussi à réduire au maximum toutes les causes "techniques" de bruit, il se heurte alors aux fluctuations quantiques indissociablement liées à toute mesure en physique quantique. C'est cette "limite quantique" que nous allons déterminer dans les paragraphes suivants pour déterminer la précision ultime de telles mesures.

2.2 Cas d'un seul atome : "bruit de projection"

La population $\langle N_b \rangle$ du niveau excité n'est autre que la valeur moyenne de l'opérateur $\hat{N}_b = |b\rangle\langle b|$ de projection sur l'état $|b\rangle$, d'où le nom de "bruit de projection" pour qualifier le bruit quantique affectant cette mesure [**?**]. La variance de cette mesure pour un état $|\Psi\rangle$ est donnée par :

$$\Delta^2 N_b = \langle\psi|\hat{N}_b^2|\psi\rangle - (\langle\psi|\hat{N}_b|\psi\rangle)^2 = \langle N_b\rangle(1 - \langle N_b\rangle) \tag{8.4}$$

car $\hat{N}_b^2 = \hat{N}_b$. On constate donc que le bruit ΔN_b ne dépend de l'état $|\Psi\rangle$ du système que par la valeur qu'il donne à $\langle\psi|\hat{N}_b|\psi\rangle$. Il vaut plus précisément :

$$\Delta N_b = \frac{1}{2}|sin(\omega - \omega_0)T| \tag{8.5}$$

Il est nul pour une impulsion π et maximum et égal à $0,5$, soit la population moyenne, pour une impulsion $\pi/2$.

En ce qui concerne le "signal d'erreur" N_M utilisé en métrologie, comme les deux mesures successives sont indépendantes, on ajoute les fluctuations correspondantes en moyenne quadratique. Au voisinage immédiat de la résonance ($\delta = \omega - \omega_0 << 1/T$), ce bruit vaut :

$$\Delta N_M \simeq \frac{1}{\sqrt{2}}|sin\delta_1 T| \tag{8.6}$$

Le plus petit écart à résonance mesurable $(\omega - \omega_0)_{min}$ sera celui pour lequel le signal est égal au bruit qui affecte sa mesure. Il vaut donc :

$$(\omega - \omega_0)_{min} = \frac{1}{T\sqrt{2}} \tag{8.7}$$

On constate que cette valeur est indépendante de la valeur de δ_1 utilisée. c'est à peu près la valeur de la largeur de l'arche centrale de la courbe de résonance. Quelle que soit la qualité du montage expérimental utilisé, on ne pourra donc pointer le centre de résonance à mieux que sa largeur, à cause des fluctuations quantiques inévitables qui affectent cette mesure.

2.3 Cas de N atomes indépendants

L'expérience réelle est réalisée non pas sur un atome unique, mais sur un ensemble de N atomes. L'état de ces atomes est supposé pour l'instant être le produit tensoriel de N états identiques relatifs à chaque atome (atomes statistiquement indépendants les uns des autres). Chaque atome a une probabilité $\langle N_b \rangle$ d'être dans l'état $|b\rangle$. Nous supposerons en outre que le nombre N est fixe et non fluctuant. La probabilité de trouver N_b atomes dans l'état excité parmi les N atomes obéit à une distribution binomiale :

$$P(N_b) = C_N^{N_b} \langle N_b \rangle^{N_b} (1 - \langle N_b \rangle)^{N-N_b} \tag{8.8}$$

On en déduit facilement que la valeur moyenne de N_b vaut $N\langle N_b \rangle$, et la variance $N\langle N_b \rangle(1 - \langle N_b \rangle)$, ce qui est un résultat classique, soit dans le cas présent :

$$\Delta N_b = \frac{\sqrt{N}}{2} |sin\delta_1 T| \tag{8.9}$$

Le signal augmente comme le nombre d'atomes, et le bruit comme la racine carrée de ce nombre, ce qui est habituel quand on ajoute des évènements indépendants. L'analyse précédente montre alors que le plus petit écart à résonance mesurable est alors :

$$(\omega - \omega_0)_{min} = \frac{1}{T\sqrt{2N}} \tag{8.10}$$

On peut donc maintenant pointer le centre de la résonance avec une incertitude égale à sa largeur divisée par $\sqrt{N}$, et on conçoit qu'il est avantageux d'utiliser beaucoup d'atomes dans l'expérience, ou bien de la répéter N fois, ce qui donnera le même résultat, vu la démonstration que nous venons de faire. Mais le nombre maximal d'atomes ou de mesures successives est forcément limité supérieurement, à cause de contraintes expérimentales sur la source d'atomes et la stabilité du générateur micro-onde. Est-ce qu'il n'existe pas d'autres moyens de réduire l'incertitude sur la mesure, en gardant N constant ?

2.4 Cas de N atomes couplés de manière cohérente ; approche semi-classique

La première idée consiste à envisager le cas de N atomes couplés de manière cohérente à l'onde incidente, c'est-à-dire avec des facteurs de phase relatifs fixes. C'est une configuration que nous avons étudiée dans le paragraphe (6.6.1). Appelons $|i : a\rangle$ par exemple l'état correspondant au i^{me} atome dans l'état $|a\rangle$. On a vu qu'on se ramenait au problème de l'interaction d'un moment cinétique de $s = N/2$ avec le champ. Si on suppose pour simplifier que les N atomes se trouvent à une distance de l'origine bien inférieure à λ, les facteurs de propagation de l'onde pour chaque atome sont proches de 1, et l'hamiltonien semi-classique décrivant ce système s'écrit, à l'approximation quasi-résonnante :

$$\hat{H} = \hbar\omega_0(\hat{S}_z + \frac{N}{2}) + \frac{\hbar\Omega_R}{2}(\hat{S}_+ e^{-i\omega t} + \hat{S}_- e^{i\omega t}) \tag{8.11}$$

où $\hat{\vec{S}} = \sum_{i=1}^{N} \hat{\vec{\sigma}}_i$ est le spin fictif total, $\hat{S}_+ = \sum_{i=1}^{N} |i : b\rangle\langle i : a|$, et Ω_R la fréquence de Rabi d'un atome dans le champ appliqué.

Le signal métrologique est la mesure de $\hat{N}_b = \hat{S}_z + \frac{N}{2}$. Cet opérateur n'est plus un projecteur, et l'analyse précédente n'est donc plus valide. On voit que la mesure ne sera entachée d'aucune erreur si le système se trouve dans un état propre de $\hat{S}_z$, $|s, m_s\rangle$, au moment où il est mesuré, c'est-à-dire à la fin de la séquence des impulsions. Il faut donc déterminer l'état du spin fictif sous l'effet des impulsions de Ramsey. On a vu que c'était une suite de rotations :

- une rotation de $\pi/2$ autour de Ox pour la première impulsion (si le champ appliqué est réel) ;
- une rotation de δT autour de $0z$ pendant le "temps noir" ;
- une deuxième rotation de $\pi/2$ autour de Ox pour la deuxième impulsion.

Il est facile de montrer que le vecteur géométrique $\vec{S'}$ qui se déduit d'un vecteur initial $\vec{S}$ par cette série de transformations géométriques a pour composantes :

$$\begin{aligned} S'_x &= S_z sin\delta T + S_x cos\delta T \\ S'_y &= -S_y \\ S'_z &= -S_z cos\delta T + S_x sin\delta T \end{aligned}$$

Si on résout les équations de Heiseberg du système dans le référentiel tournant, on va trouver les mêmes relations, cette fois-ci pour les opérateurs

quantiques correspondants. On en déduit :

$$\hat{N}_b = \frac{N}{2} - \hat{S}_z cos\delta T + \hat{S}_x sin\delta T \tag{8.12}$$

$\hat{S}_z$ et $\hat{S}_x$ étant les valeurs des opérateurs en représentation de Heisenberg avant les impulsions de Ramsey.

Supposons qu'au début du processus, tous les atomes sont dans l'état fondamental. L'état (constant dans le temps) du système est donc $|s = N/2, m_s = -N/2\rangle$. On en déduit :

$$\begin{aligned}
\langle N_b \rangle &= \frac{N}{2}(1 + cos\delta T) \\
\langle \hat{N}_b^2 \rangle &= ||(\frac{N}{2} - \hat{S}_z cos\delta T + \hat{S}_x sin\delta T)|s = N/2, m_s = -N/2\rangle||^2 \\
&= ||(\frac{N}{2}(1 + cos\delta T)|s = N/2, m_s = N/2\rangle \\
&+ \frac{sin\delta T}{2}\sqrt{N/2(N/2+1) - N/2(N/2-1)}|s = N/2, m_s = -N/2+1\rangle||^2 \\
&= \langle N_b \rangle^2 + \frac{N}{4} sin^2\delta T
\end{aligned}$$

On trouve en fin de compte :

$$\Delta N_b = \frac{\sqrt{N}}{2}|sin\delta T| \tag{8.13}$$

qui est le résultat déjà trouvé pour des atomes statistiquement indépendants. Les effets de couplage cohérent présents ici, et qui ont un effet déterminant sur l'évolution du dipôle, n'interviennent pas lorsqu'on mesure une population.

On voit aussi que le résultat sera différent si on part d'un état initial qui n'est pas $|s = N/2, m_s = -N/2\rangle$, c'est-à-dire d'un état possédant dès l'origine des corrélations quantiques inter-atomiques. Plus précisément, il est aisé de voir que la variance du nombre d'atomes dans l'état excité s'exprime en fonction des caractéristiques de l'état du système avant les impulsions de Rabi par la formule :

$$\Delta^2 N_b = \Delta^2 S_z cos^2\delta T + \Delta^2 S_x sin^2\delta T - \langle \hat{C}_{\hat{S}_x,\hat{S}_z} \rangle sin2\delta T \tag{8.14}$$

où $\hat{C}_{\hat{S}_x,\hat{S}_z}$ est l'opérateur corrélation entre $\hat{S}_x$ et $\hat{S}_z$ défini au début de ce chapitre. Pour réduire les fluctuations sur le signal métrologique, il faut donc

minimiser cette quantité, sachant que la non-commutativité des deux opérateurs $\hat{S}_x$ et $\hat{S}_z$ entraine l'existence d'une relation de Heisenberg généralisée :

$$\Delta^2 S_z \Delta^2 S_x - \langle \hat{C}_{\hat{S}_x,\hat{S}_z} \rangle \geq \frac{\hbar^2}{4} \langle \hat{S}_y \rangle^2 \tag{8.15}$$

2.5 Cas de N atomes couplés de manière cohérente : approche quantique

Nous allons montrer dans ce paragraphe qu'il est possible de créer un état quantique initial approprié pour les N atomes à l'aide d'une première phase d'interaction entre les atomes et un champ appliqué résonnant avec les atomes. Puisqu'il s'agit de calculer des corrélations et des fluctuations, nous avons besoin d'une description complètement quantique de cette phase de préparation. Cette description a été introduite dans le paragraphe 2 du chapitre 6. Nous savons que celle-ci est simple si le système atomique n'est que très faiblement excité dans le processus, et que les N atomes restent dans leur majorité dans l'état fondamental. On peut alors écrire $\hat{S}_z \simeq N/2$. On a vu qu'il y avait alors "interchangeabilité" entre l'opérateur champ et l'opérateur atomique $\hat{S}_+$ pour un temps d'interaction correspondant à une impulsion $\pi/2$.

Si on fait se succéder la phase de préparation et la phase des impulsions de Rabi, on trouve que l'opérateur $\hat{N}_b$ à l'issue de ce processus peut s'exprimer en fonction des opérateurs à l'instant initial comme :

$$\hat{N}_b = \frac{N}{2}(1 + cos\delta T) + i\frac{\sqrt{N} sin\delta T}{2}(e^{-i\omega_0 t_1}\hat{a}(0) - e^{i\omega_0 t_1}\hat{a}^+(0)) \tag{8.16}$$

Il s'écrit comme la somme de la valeur moyenne classique et d'un opérateur fluctuation dont il faut prendre la valeur moyenne dans l'état initial du champ. Si ce champ est le vide (qui satisfait évidemment aux hypothèses simplificatrices utilisées ici), on retrouve comme prévu :

$$\Delta^2 N_b = -\frac{N sin^2\delta T}{4}\langle 0|(e^{-i\omega_0 t_1}\hat{a}(0) - e^{i\omega_0 t_1}\hat{a}^+(0))^2|0\rangle = \frac{N sin^2\delta T}{4} \tag{8.17}$$

On sait qu'il existe des états du rayonnement qui donnent d'autres valeurs à la variance de cet opérateur fluctuation : en particulier le "vide comprimé" donne à cette combinaison de $\hat{a}$ et $\hat{a}^+$ (appelée "opérateur de quadrature") une valeur plus petite que ce que l'on a dans le vide, et aussi petite que l'on veut, au détriment des fluctuations sur la variable conjuguée, qui augmentent

dans la même proportion, de manière à satisfaire à l'inégalité de Heisenberg. Mais ces fluctuations divergentes ne sont pas couplées aux atomes, qui ne "voient" que la composante dont le bruit est réduit.

En résumé si on envoie sur le système des N atomes dans l'état fondamental un "vide comprimé" de fréquence ω_0 pendant un temps t_1 convenable, et qu'on effectue ensuite la séquence des impulsions de Rabi avec un autre champ classique de fréquence variable ω, on a un signal spectroscopique sur bruit de fond réduit, donc un meilleur rapport signal/bruit.

3. Fluctuations et corrélations en présence de dissipation

On s'intéresse maintenant à un système quantique non isolé, plus précisément à un "petit" système en contact avec un "grand" système, appelé réservoir, qui induit une relaxation sur les observables du petit système. Prenons l'exemple d'un atome excité dans une vapeur atomique. Le réservoir, en l'occurrence tous les atomes du gaz, provoque la désexcitation de l'atome considéré, mais il a aussi un autre rôle : celui d'induire dans le petit système des fluctuations, liées à l'aspect aléatoire des collisons entre l'atome considéré et les autres atomes. Ce phénomène est en fait très général, et il est formalisé sous la forme d'un célèbre théorème dit de "fluctuation-dissipation".

3.1 Equation de Langevin classique

L'aspect aléatoire de l'interaction avec un réservoir peut se décrire dans le cas classique par l'introduction d'une force fluctuante, dite "force de Langevin" [2, **?**]. Par exemple, dans le cas du mouvement Brownien (particule de masse M en présence d'une force fixe extérieure $\vec{F}_{cl}$ et immergée dans un liquide ou un gaz), on écrira :

$$M\frac{d\vec{v}}{dt} = \vec{F}_{cl} - M\gamma\vec{v} + \vec{F}_L(t) \tag{8.18}$$

Le deuxième terme décrit une force de friction agissant sur la particule, qui est le résultat moyen de l'interaction avec le réservoir, et $\vec{F}_L(t)$ une force fluctuante, de valeur moyenne nulle, qui permet de rendre compte du détail du mouvement Brownien. Le comportement statistique de cette force est décrit par sa fonction de corrélation temporelle :

$$\overline{\vec{F}_L(t)\vec{F}_L(t')} = 2DM^2\delta(t-t') \tag{8.19}$$

la barre supérieure indiquant la moyenne sur l'ensemble statistique, et D étant le coefficient de diffusion de la particule dans le fluide. Si le réservoir est un thermostat de température T, on montre que γ et D, qui ont même origine physique, sont liés par la relation d'Einstein :

$$\gamma = \frac{M}{k_B T} D \tag{8.20}$$

qui illustre cette proportionnalité entre effets de dissipation et fluctuations.

3.2 Equation de Langevin quantique

Pour un système quantique non isolé, on sait [2] que l'équation d'évolution de la matrice densité ("équation pilote") permet en principe de calculer toutes les valeurs moyennes d'observables du petit système : donc non seulement les valeurs moyennes, mais aussi les variances et les corrélations. Mais l'équation de la matrice densité est souvent compliquée et difficile à résoudre. En général, on ne s'intéresse qu'à quelques observables, et on aimerait avoir des équations pour ces seules observables, a priori plus simples que l'équation pilote qui contient l'ensemble des informations sur le système.

Les équations du type équations de Bloch donnent l'évolution de la valeur moyenne d'une observable particulière $\langle \hat{A} \rangle$, sous la forme :

$$\frac{d}{dt}\langle \hat{A} \rangle = \frac{1}{i\hbar}\langle [\hat{A}, \hat{H}] \rangle - \Gamma_A \langle \hat{A} \rangle \tag{8.21}$$

Il serait utile de trouver une équation analogue pour les *opérateurs*, qui permettrait alors de déterminer les variances et les corrélations, et pas seulement les valeurs moyennes. Une candidate possible est l'équation :

$$\frac{d}{dt}\hat{A} = \frac{1}{i\hbar}[\hat{A}, \hat{H}] - \Gamma_A \hat{A} \tag{8.22}$$

car sa valeur moyenne donne l'équation de Bloch. On peut se rendre compte que cette équation ne peut convenir. Il est en effet facile de montrer que si deux observables $\hat{A}$ et $\hat{B}$ obéissent à des équations de ce type (avec deux taux de relaxation Γ_A et Γ_B), alors :

$$\frac{d}{dt}[\hat{A}_H, \hat{B}_H] = -(\Gamma_A + \Gamma_B)[\hat{A}_H, \hat{B}_H] \tag{8.23}$$

où $\hat{A}_H(t)$ est la solution de l'équation d'évolution en l'absence de relaxation ($\hat{A}_H(t) = exp(-i\hat{H}t/\hbar)\hat{A}exp(i\hat{H}t/\hbar)$). Il en résulte que le commutateur de

ces deux quantités, quelles qu'elles soient, tend vers zéro aux temps longs, ce qui est absurde. Pour restaurer une évolution "canonique", c'est-à-dire qui conserve les commutateurs au cours du temps, il faut rajouter un opérateur de valeur moyenne nulle, ou opérateur de bruit, qui est l'analogue quantique de la force de Langevin. La théorie quantique de la relaxation montre en effet que l'équation d'évolution correcte s'écrit :

$$\frac{d}{dt}\hat{A} = \frac{1}{i\hbar}[\hat{A}, \hat{H}] - \Gamma_A \hat{A} + \hat{F}_A(t) \tag{8.24}$$

où l'opérateur "force de Langevin quantique", de valeur moyenne nulle, a une fonction de corrélation temporelle proportionnelle à la fonction delta :

$$\hat{F}_A(t)\hat{F}_A(t') = 2D_{\hat{A},\hat{A}}\delta(t-t') \tag{8.25}$$

L'équation d'évolution ci-dessus est appelée "équation de Langevin quantique". Dans les paragraphes suivants, nous allons en préciser la forme dans deux cas particuliers importants.

3.3 Dissipation d'un mode du champ dans une cavité avec pertes

Considérons une cavité résonnante avec un mode du champ de fréquence ω, comme celles utilisées dans les problèmes d'électrodynamique en cavité étudiés dans le paragraphe (6.4), et qui présente des pertes : il y a dissipation d'énergie dans les parois du miroir, ou bien couplage du mode de la cavité avec un ou des modes extérieurs (miroirs de transmission non nulle). Pour modéliser ce système, on suppose qu'il y a couplage linéaire entre le mode de cavité, décrit par les opérateurs $\hat{a}$ et $\hat{a}^+$, et un très grand nombre de modes du champ, qu'ils soient diffusés par le miroir pour rendre compte des pertes, ou bien transmis par celui-ci à l'extérieur, et que l'on décrira par les opérateurs de champ $\hat{b}_i$ et $\hat{b}_j^+$ $(j = 1, .., N_m)$. Ce couplage linéaire est décrit par un hamiltonien d'interaction qui échange les photons du mode de cavité avec les photons des modes de perte, soit :

$$\hat{H}_{int} = \hbar \sum_j g_j(\hat{b}_j^+\hat{a} + \hat{b}_j\hat{a}^+) \tag{8.26}$$

où g_j est un coefficient de couplage réel. L'hamiltonien $\hat{H}_{tot}$ décrivant l'ensemble de ces modes s'écrit donc :

$$\hat{H}_{tot} = \hbar\omega\hat{a}^+\hat{a} + \hbar\sum_j \omega_j\hat{b}_j^+\hat{b}_j + \hat{H}_{int} \tag{8.27}$$

Les équations de Heisenberg pour les opérateurs $\hat{a}$ et $\hat{b}_j$ sont alors très simples :

$$\begin{aligned}\frac{d\hat{a}}{dt} &= -i\omega\hat{a} - i\sum_j g_j\hat{b}_j \\ \frac{d\hat{b}_j}{dt} &= -i\omega_j\hat{b}_j - ig_j\hat{a}\end{aligned}$$

Pour trouver une équation relative au seul mode de cavité, on utilise une méthode décrite maintes fois dans ce cours : on résout formellement l'équation pour les modes "inintéressants", et on reporte leur expression dans l'équation de $\hat{a}$. On obtient :

$$\frac{d\hat{a}}{dt} = -i\omega\hat{a} - i\sum_j g_j^2\int_0^t dt'\hat{a}(t')e^{-i\omega_j(t-t')} - i\sum_j g_j\hat{b}_j(0)e^{-i\omega_j t} \tag{8.28}$$

On retrouve la discussion faite dans le paragraphe (5.3.1) sur l'émission spontanée : le deuxième terme est proportionnel à $\hat{a}(t)$ (approximation de mémoire courte, ou de Markov) et décrit la dissipation du mode sous l'effet des fuites de la cavité. Le troisième terme est la force de Langevin cherchée. On obtient donc l'équation de Langevin quantique pour ce système en prenant la valeur moyenne de cette équation sur l'état $|R\rangle$ du réservoir. On obtient alors une équation pour des opérateurs agissant uniquement dans l'espace de Hilbert du petit système (le mode de cavité) :

$$\frac{d\hat{a}}{dt} = -i\omega\hat{a}(t) - \frac{\kappa}{2}\hat{a}(t) + \hat{F}_a(t) \tag{8.29}$$

Seul le dernier terme dépend de l'état du réservoir. Si on suppose que c'est un état du rayonnement thermique à la température T, on a :

$$\langle R|\hat{b}_j(0)|R\rangle = 0 \quad \langle R|\hat{b}_j(0)\hat{b}'_j(0)|R\rangle = \langle R|\hat{b}_j^+(0)\hat{b}'^+_j(0)|R\rangle = 0$$
$$\langle R|\hat{b}_j^+(0)\hat{b}'_j(0)|R\rangle = n_T(\omega_j)\delta_{j,j'} \quad \langle R|\hat{b}_j(0)\hat{b}'^+_j(0)|R\rangle = (n_T(\omega_j)+1)\delta_{j,j'}$$

où $n_T(\omega_j) = 1/(exp(\hbar\omega_j/k_BT) - 1)$ est le nombre de photons thermiques dans le mode j à la température T. Ce nombre est très proche de zéro dans le domaine visible à la température ambiante (de l'ordre de 10^{-35} pour la longueur d'onde $\lambda = 0,6\mu m$ et $T = 300K$), et ne devient supérieur ou égal à 1 que pour des rayonnements de grande longueur d'onde ($\lambda > 50\mu m$). L'expression explicite de la force de Langevin quantique permet d'en déterminer

les fonction de corrélations, en utilisant aussi l'approximation de Markov, et en faisant attention à l'ordre des opérateurs qui ne commutent généralement pas. On trouve les coefficients de diffusion suivants :

$$D_{\hat{a},\hat{a}^+} = \frac{\kappa}{2} n_T(\omega) \quad D_{\hat{a}^+,\hat{a}} = \frac{\kappa}{2}(n_T(\omega)+1) \quad D_{\hat{a},\hat{a}} = D_{\hat{a}^+,\hat{a}^+} = 0 \tag{8.30}$$

Si le réservoir est le vide (ou si $\hbar\omega > k_B T$), seul le coefficient $D_{\hat{a}^+,\hat{a}}$ est non nul. Ces relations, qui lient coefficients de diffusion, de dissipation et température du réservoir, sont les analogues quantiques de la relation d'Einstein mentionnée plus haut, et donnent l'expression du théorème de fluctuation-dissipation dans ce cas précis.

3.4 Cas d'un système à deux niveaux en présence d'émission spontanée

L'approche développée dans le chapitre (5) nous permet d'obtenir l'expression de la force de Langevin pour le cas d'un système à deux niveaux couplé à l'ensemble des modes vides du champ. On obtient alors les "équations de Bloch-Langevin" pour les opérateurs population $\hat{N}_b$ et dipôle atomique $\hat{\tilde{D}}$ dans le cas particulier où la seule cause de relaxation atomique est l'émission spontanée (milieu très dilué). Par un calcul très analogue à celui qui vient d'être décrit pour un mode du champ, on trouve [2, **?**] :

$$\begin{aligned}
\frac{d\hat{N}_b}{dt} &= -\Gamma_{sp}\hat{N}_b - i\frac{E}{2\hbar}(\hat{\tilde{D}} - \hat{\tilde{D}}^+) + \hat{F}_{N_b}(t) \\
\frac{d\hat{\tilde{D}}}{dt} &= -\left[\frac{\Gamma_{sp}}{2} - i(\omega_0 - \omega)\right]\hat{\tilde{D}} - i\frac{d^2E}{2\hbar}(\hat{N}_b - \hat{N}_a) + \hat{F}_{\tilde{D}}(t)
\end{aligned}$$

les coefficients de diffusion des forces de Langevin quantiques étant donnés par :

$$D_{\hat{N}_b,\hat{N}_b} = \frac{\Gamma_{sp}}{2}\langle\hat{N}_b\rangle; \quad D_{\hat{\tilde{D}},\hat{\tilde{D}}} = \frac{\Gamma_{sp}}{2}; \quad D_{\hat{\tilde{D}}^+,\hat{\tilde{D}}} = D_{\hat{\tilde{D}},\hat{\tilde{D}}^+} = D_{\hat{\tilde{D}}^+,\hat{\tilde{D}}^+} = 0 \tag{8.31}$$

Il faut aussi considérer que les deux forces de Langevin, dont l'origine commune est le couplage aux modes vides du champ, sont corrélées entre elles :

$$D_{\hat{N}_b,\hat{\tilde{D}}} = \frac{\Gamma_{sp}}{2}\langle\hat{\tilde{D}}\rangle; \quad D_{\hat{\tilde{D}},\hat{N}_b} = \frac{\Gamma_{sp}}{2}\langle\hat{\tilde{D}}^+\rangle \tag{8.32}$$

Ces expressions permettent de déterminer toutes les fluctuations et corrélations d'un système à deux niveaux interagissant avec un champ classique.

3.5 Théorème de régression quantique

C'est une autre méthode permettant de déterminer directement l'équation d'évolution de la valeur moyenne du produit de deux opérateurs pris à des instants différents, du type $\langle \hat{A}(t)\hat{B}(t')\rangle$. Prenons l'exemple de la dissipation d'un mode du champ dans une cavité à pertes :

$$\frac{d}{dt}\hat{a}(t) = -i\left[\omega - \frac{\kappa}{2}\right]\hat{a}(t) + \hat{F}_a(t) \tag{8.33}$$

On en déduit :

$$\frac{d}{dt}\langle \hat{a}(t)\hat{a}(t')\rangle = -i\left[\omega - \frac{\kappa}{2}\right]\langle \hat{a}(t)\hat{a}(t')\rangle + \langle \hat{F}_a(t)\hat{a}(t')\rangle \tag{8.34}$$

Par intégration directe de la première équation, on sait que :

$$\hat{a}(t') = \int_0^{t'} dt" e^{-i(\omega+\frac{\kappa}{2})(t'-t")}\hat{F}_a(t") \tag{8.35}$$

Donc :

$$\begin{aligned}\langle \hat{F}_a(t)\hat{a}(t')\rangle &= \int_0^{t'} dt" e^{-i(\omega+\frac{\kappa}{2})(t'-t")}\langle \hat{F}_a(t)\hat{F}_a(t")\rangle \\ &= 2D_{\hat{a},\hat{a}}\int_0^{t'} dt" e^{-i(\omega+\frac{\kappa}{2})(t'-t")}\delta(t-t")\end{aligned}$$

Cette quantité est nulle si $t > t'$. Ce résultat est une conséquence de la causalité : $\hat{a}(t')$ ne peut dépendre que des valeurs de la force de Langevin prises à des instants antérieurs à t', qui sont non corrélées aux valeurs de cette force à des instants postérieurs à t'. L'équation d'évolution de la moyenne à deux temps se simplifie donc dans ce cas :

$$t > t' \Rightarrow \frac{d}{dt}\langle \hat{a}(t)\hat{a}(t')\rangle = -i\left[\omega - \frac{\kappa}{2}\right]\langle \hat{a}(t)\hat{a}(t')\rangle \tag{8.36}$$

elle est identique à l'équation pour $\langle \hat{a}(t)\rangle$.

Le théorème de régression quantique s'énonce donc ainsi : *l'équation d'évolution d'une moyenne à deux temps est formellement la même que celle de la moyenne à un temps.* Cette règle, très générale, est liée uniquement à l'approximation de mémoire courte et à la causalité. Elle s'applique aussi aux équations de Bloch, qui permettent donc de déterminer toutes les moyennes à deux temps.

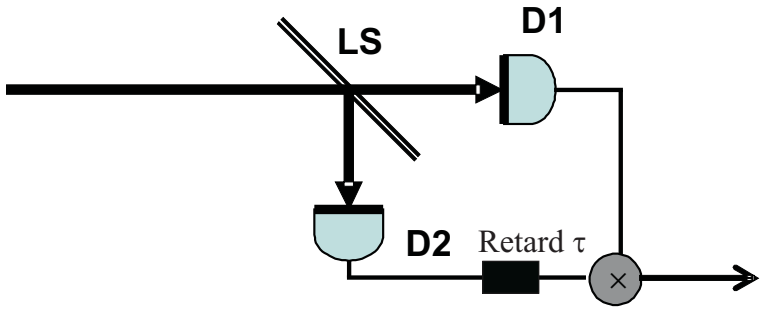

Fig. 8.1: dispositif de mesure d'une corrélation d'intensité

4. Corrélations d'intensité lumineuse

4.1 Corrélation d'intensité pour des champs classiques

Les astrophysiciens Hanbury-Brown et Twiss ont été les premiers, dans les années 50, à s'intéresser aux *corrélations d'intensité lumineuse*. Le signal de corrélation est obtenu par le dispositif expérimental schématisé sur la figure 8.1 : le faisceau lumineux dont on veut mesurer les propriétés est séparé en deux parties égales par une lame semi-réfléchissante LS. Deux photodétecteurs D_1 et D_2 mesurent l'intensité instantanée $I(t)$ de la lumière sur chacune des voies de sortie. Un dispositif électronique, comportant une ligne à retard introduisant un délai τ sur le deuxième signal et un mélangeur multiplicateur de courants, permet d'obtenir le signal de corrélation d'intensité :

$$G_2(\tau) = \overline{I(t)I(t+\tau)} \tag{8.37}$$

où la barre supérieure indique une moyenne temporelle sur t. Si la source lumineuse est stationnaire dans le temps, cette quantité ne dépend en effet que de la différence entre les deux instants de mesure.

Lorsque τ est plus grand que le temps de corrélation de la source lumineuse, les valeurs de $I(t)$ et $I(t+\tau)$ sont des grandeurs stochastiques statistiquement indépendantes. On a donc :

$$G_2(t \to \infty) = \overline{I(t)}\ \overline{I(t+\tau)} = \left(\overline{I(t)}\right)^2 \tag{8.38}$$

à cause de la stationnarité. Or $\overline{I(t)I(t)} \geq \left(\overline{I(t)}\right)^2$ (la différence, égale à $\overline{\left(I(t) - \overline{I(t)}\right)^2}$ est en effet toujours positive). On en déduit qu'on a toujours,

dans le cas de champs classiques fluctuants :

$$G_2(\tau = 0) \geq G_2(\tau \to \infty) \tag{8.39}$$

ou, si on définit la fonction de corrélation normalisée g_2 par :

$$g_2(\tau) = \frac{\overline{I_1(t) I_2(t+\tau)}}{\overline{I_1(t)}\ \overline{I_2(t)}} \tag{8.40}$$

on a alors :

$$g_2(0) \geq g_2(\infty) = 1 \tag{8.41}$$

La fonction $g_2(\tau)$ a donc la forme d'une bosse centrée en $\tau = 0$ dont la largeur permet de déterminer le temps de corrélation d'intensité de la source. Hanbury-Brown et Twiss ont montré qu'on pouvait, par un montage légèrement différent, avoir accès à la cohérence spatiale de la source, et donc, si la lumière provient d'une étoile, à son diamètre angulaire. La mesure des corrélations d'intensité permet donc de remonter aux propriétés de cohérence de la source lumineuse, au même titre que les mesures interférométriques habituelles, qui sont en fait des mesures de *corrélations d'amplitude* du champ.

4.2 Corrélation d'intensité pour des champs quantiques

Si on envisage le signal de photodétection comme dû à l'arrivée des photons sur le détecteur (même si le débit de ces photons est trop grand pour qu'ils puissent être distingués individuellement par le détecteur), le maximum de g_2 à l'origine indique une tendance des photons émis par une source classique à se "grouper" temporellement. C'est le phénomène de "groupement", ou "bunching".

Ce phénomène subsiste-t-il dans une description quantique du rayonnement ? Nous allons voir que ce n'est pas toujours le cas, et donc que la mesure des corrélations d'intensité permet de de tracer sans ambiguité la frontière entre champs classiques et champs "non-classiques", pour lesquels aucune description classique n'est à même de rendre compte des phénomènes observés.

Le dispositif schématisé sur la figure 8.1 utilise maintenant des photodétecteurs capables de compter les photons sur les deux voies de sortie, et le dispositif électronique mesure les *coïncidences* entre les impulsions de courant provoquées par l'arrivée de chaque photon sur ces deux détecteurs. On

envoie sur ce dispositif une lumière formée de photons bien séparés les uns des autres. La lame semi-réfléchissante, qui ne peut couper ces photons, "atomes" de lumière, en deux, va les aiguiller aléatoirement sur l'une ou l'autre des ses sorties, avec des probabilités de $0,5$ pour les deux éventualités. Il n'y aura donc jamais de photons arrivant simultanément sur les deux photodétecteurs : $G_2(\tau = 0)$ va donc être nul, alors que $G_2(\tau)$ sera non nul pour des retards τ supérieurs à l'intervalle de temps moyen séparant deux photons successifs émis par la source. On a donc une situation où :

$$G_2(\tau = 0) = 0 \leq G_2(\tau \to \infty) \tag{8.42}$$

Il y a "dégroupement" des photons ("antibunching"). La prédiction quantique pour cet état particulier du champ entre en totale contradiction avec la prédiction classique.

4.3 Signal de photodétection double

Nous avons vu dans le paragraphe (4.3) que le signal de photodétection au point $\vec{r}$ était, à une constante multiplicative près, donné par la valeur moyenne de l'observable $\hat{\Phi}(\vec{r})$ dans l'état du rayonnement incident sur le détecteur, avec :

$$\hat{\Phi}(\vec{r}) = \left(\widehat{E}^+(\overrightarrow{r}, t)\right)^+ \left(\widehat{E}^+(\overrightarrow{r}, t)\right) \tag{8.43}$$

Un raisonnement analogue permet de montrer que le signal de photodétection en coïncidence, ou photodétection double, est, toujours à une constante multiplicative près, la valeur moyenne dans l'état du champ incident de l'observable $\hat{G}_2(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \tau)$ donnée par :

$$\hat{G}_2(\vec{r}_1, \vec{r}_2, \tau) = \left(\widehat{E}^+(\vec{r}_1, t)\right)^+ \left(\widehat{E}^+(\vec{r}_2, t+\tau)\right)^+ \widehat{E}^+(\vec{r}_2, t+\tau)\widehat{E}^+(\vec{r}_1, t) \tag{8.44}$$

$\vec{r}_1$ et $\vec{r}_1$ étant les positions des deux photodétecteurs, supposés ponctuels. Si on se rappelle que $\widehat{E}^+$ est une combinaison linéaire d'opérateurs d'annihilation $\hat{a}_l$, on voit que l'opérateur $\widehat{E}^+(\vec{r}_2, t+\tau)\widehat{E}^+(\vec{r}_1, t)$ va toujours détruire deux photons sur l'état du champ. On obtiendra donc un signal de double détection nul si cet état ne comporte qu'un photon, dans un mode quelconque, et donc $g_2(\tau) = 0$ pour tout τ dans ce cas.

Supposons maintenant que le champ incident est décrit par un état $|\Psi\rangle$ produit tensoriel d'états cohérents dans chacun des modes du champ (certains

modes pouvant être dans l'état vide). $|\Psi\rangle$ est état propre de l'opérateur $\widehat{E}^+(\vec{r},t)$ en tout point et à tout instant :

$$\widehat{E}^+(\vec{r},t)|\Psi\rangle = \langle\widehat{E}^+(\vec{r},t)\rangle|\Psi\rangle \tag{8.45}$$

Donc

$$\begin{aligned}\langle\Psi|\left(\widehat{E}^+(\vec{r}_1,t)\right)^+\left(\widehat{E}^+(\vec{r}_2,t+\tau)\right)^+\widehat{E}^+(\vec{r}_2,t+\tau)\widehat{E}^+(\vec{r}_1,t)|\Psi\rangle = \\ \langle\left(\widehat{E}^+(\vec{r}_1,t)\right)^+\rangle\langle\left(\widehat{E}^+(\vec{r}_2,t+\tau)\right)^+\rangle\langle\widehat{E}^+(\vec{r}_2,t+\tau)\rangle\langle\widehat{E}^+(\vec{r}_1,t)\rangle = \\ \langle\Psi|\left(\widehat{E}^+(\vec{r}_1,t)\right)^+\widehat{E}^+(\vec{r}_1,t)|\Psi\rangle\langle\Psi|\left(\widehat{E}^+(\vec{r}_2,t+\tau)\right)^+\widehat{E}^+(\vec{r}_2,t+\tau)|\Psi\rangle\end{aligned}$$

d'où l'on déduit :

$$g_2(\tau) = 1 \quad \forall\tau \tag{8.46}$$

g_2 est constant et égal à 1 pour un état cohérent monomode ou multimode : il n'y a dans ce cas ni groupement ni dégroupement des photons, ce qui se comprend si l'on considère que les photons dans un état cohérent ont des instants d'arrivée statistiquement indépendants les uns des autres (distribution de Poisson). On retrouve donc ici aussi les états cohérents à la frontière entre monde classique et monde purement quantique.

Il existe en revanche d'autres états quantiques du champ pour lequel il y a groupement de photons, comme dans le cas classique. C'est en particulier le cas lorsqu'on fait une superposition statistique d'états cohérents de valeurs de α différentes (cas non pur), ou pour l'état d'un champ thermique à une température T donnée.

4.4 Signal de corrélation d'intensité dans la fluorescence d'un atome unique

Comment produire un état du champ dans lequel les photons sont "dégroupés", c'est-à-dire bien isolés les uns des autres ? Une méthode possible est de les produire par un *émetteur quantique unique*, par exemple un atome à deux niveaux isolé. Dans ce cas, un seul photon d'émission spontanée peut être émis à un moment donné par l'atome, et le photon suivant ne peut être produit qu'après ré-excitation de l'atome. Le calcul suivant va permettre de confirmer et de préciser cette idée intuitive.

Il nous faut d'abord décrire quantiquement le champ de fluorescence émis par un atome soumis à une excitation résonnante continue. Si on adopte tout

d'abord un point de vue classique, celui du modèle de Lorentz, on sait que le champ rayonné par un dipôle à grande distance est proportionnel à la dérivée temporelle seconde de ce dipôle. Pour un atome excité à la fréquence de résonance ω_0, le dipôle oscille à cette fréquence, et l'amplitude complexe E_{ray} du champ électrique rayonné est donc proportionnelle à $-\omega_0^2\tilde{D}$, où $\tilde{D}$ est l'amplitude complexe du dipôle atomique. Un calcul quantique du champ rayonné [2, **?**] montre qu'on a la même relation pour les équivalents quantiques de ces quantités, c'est-à-dire que $\hat{E}^+_{ray}(t)$ est proportionnel à $\hat{D}^+(t-t_{prop})$ opérateur dipôle complexe en représentation de Heisenberg, où t_{prop} est le temps de propagation de la lumière de l'atome au détecteur. On peut donc écrire la fonction de corrélation du champ de fluorescence mesuré par deux détecteur situés à la même distance de l'atome (même t_{prop}) sous la forme :

$$G_2(\tau) = K\langle\left(\widehat{D}^+(0)\right)^+\left(\widehat{D}^+(\tau)\right)^+\widehat{D}^+(0)\widehat{D}^+(\tau)\rangle \tag{8.47}$$

où K est une constante, la valeur moyenne étant prise dans l'état stationnaire de l'atome, décrit par une matrice densité qui se déduit des équations de Bloch. Pour trouver l'expression explicite de l'opérateur $\hat{D}^+(t)$, on part du fait que sa valeur moyenne est proportionnelle à la cohérence $\rho_{ba}(t)$, qui est la valeur moyenne de l'opérateur $|b\rangle\langle a|$, toujours en représentation de Heisenberg. On a donc :

$$\hat{D}^+(t) = \hat{U}^+(t)|b\rangle\langle a|\hat{U}(t) \tag{8.48}$$

où $\hat{U}(t)$ est l'opérateur d'évolution de l'atome. On a donc :

$$\begin{aligned} G_2(\tau) &= K\langle|b\rangle\langle a|\hat{U}^+(t)|b\rangle\langle a|\hat{U}(t)\hat{U}^+(t)|a\rangle\langle b|\hat{U}(t)|a\rangle\langle b|\rangle \\ &= KN_b^{stat}|\langle b|\hat{U}(t)|a\rangle|^2 \end{aligned}$$

où $N_b = \langle|b\rangle\langle b|\rangle$ est la population stationnaire du niveau excité. Cette expression a une interprétation physique simple : la probabilité conjointe de mesurer un photon à l'instant 0 et un photon à l'instant τ est proportionnelle au produit de la probabilité d'émission du premier photon (proportionnelle à N_b) par la probabilité de mesurer le second photon sachant que le premier a été émis. Comme juste après l'émission du premier photon, le système se trouve de façon certaine dans l'état fondamental $|a\rangle$, celle-ci est donnée par la probabilité qu'a un atome se trouvant à l'instant $t = 0$ dans l'état fondamental de se trouver dans l'état excité à l'instant τ, qui est justement $|\langle b|\hat{U}(t)|a\rangle|^2$.

Pour trouver la fonction de corrélation normalisée, il faut diviser par $G_2(\infty) = K(N_b^{stat})^2$, et on a finalement :

$$g_2(\tau) = \frac{|\langle b|\hat{U}(t)|a\rangle|^2}{N_b^{stat}} \tag{8.49}$$

La valeur de g_2 se déduit donc de la solution du régime transitoire des équations de Bloch. On trouve alors :

$$g_2(\tau) = 1 - e^{-3\Gamma_{sp}\tau/4} cos(\Omega_R \tau) \tag{8.50}$$

résultat qu'on aurait aussi pu trouver en utilisant le théorème de régression quantique. On trouve bien que $g_2(\tau = 0) = 0$, et qu'il y a décorrélation des émissions pour des temps τ longs devant la durée de vie du niveau excité.

L'expérience qui a permis de confirmer ces prédictions a été réalisée pour la première fois en 1977 par Kimble, Dagenais et Mandel (Phys. Rev. Letters **39**, 691 (1977)) : en mesurant g_2 sur la lumière de fluorescence émise par un jet atomique très dilué excité par un laser résonnant, ils ont pu observer que $g_2(0) < g_2(\infty)$, ce qui était en contradiction avec les prédictions de la théorie classique. Cette expérience a eu un grand retentissement, car elle a constitué la première preuve inattaquable que la quantification du rayonnement était indispensable pour décrire certains phénomènes lumineux. Comme dans un jet, même dilué, la probabilité d'avoir deux atomes dans la zone d'interaction n'est pas complètement nulle, la valeur de $g_2(0)$ mesurée était non nulle. L'expérience a été reprise ultérieurement sur des émetteurs quantiques réellement isolés : ion piégé unique, molécule ou nanoparticule bien isolée sur une surface. La figure **??** donne un exemple de mesure expérimentale de g_2 sur un de ces systèmes, où on voit bien l'annulation de g_2 à l'origine. On dispose donc actuellement de sources de photons dégroupés faciles à utiliser, utiles notamment pour des expériences de cryptographie quantique.

9. ANNEXE : ELEMENTS SUR LA STRUCTURE DES ATOMES

Le but de cet appendice est de faire quelques rappels sur la structure des atomes. Ces rudiments sont utiles pour la bonne compréhension des différents chapitres du cours d'optique quantique. Pour plus de détails, le lecteur se reportera à des ouvrages spécialisés, ou aux cours de Maîtrise des différentes Universités.

L'une des caractéristiques essentielles des atomes, au delà de leurs importantes différences mutuelles, est qu'ils possèdent une invariance par rotation autour du noyau. Comme on sait que l'opérateur quantique d'une rotation de vecteur $\vec{\omega}$ autour de l'origine s'écrit $exp(-i\vec{\omega}\cdot\vec{\hat{M}}_c/\hbar)$ où $\vec{\hat{M}}_c$ est le moment cinétique total du système que l'on fait tourner, on en déduit que l'hamiltonien du système commute nécessairement avec les trois composantes de ce moment cinétique, et donc que les états propres de cet hamiltonien sont aussi états propres de $\vec{\hat{M}}_c^{\,2}$ et $\vec{M}_{c,z}$. On peut donc répertorier les niveaux d'énergie d'un atome par les nombres quantiques relatifs à son moment cinétique total, et dans beaucoup de cas, comme nous le verrons plus bas, par ceux relatifs aux différents moments cinétiques des sous-systèmes invariants par rotation. Par exemple, si on néglige les interactions entre électrons dans un atome à plusieurs électrons, le système est invariant par rotation séparée de chacun des électrons qui le composent, et les niveaux d'énergie peuvent être répertoriés par les nombres quantiques du moment cinétique total (orbital + spin) de chacun des électrons.

1. Structure de l'atome d'hydrogène

L'atome d'hydrogène est le plus simple de tous les atomes, celui dont on peut calculer avec la plus grande précision les niveaux d'énergie. La confrontation des déterminations théoriques avec les mesures des fréquences de transition dans cet atome constitue un test incontournable de la validité des

théories physiques. Tout au long du siècle dernier, les expérimentateurs ont constamment cherché à améliorer la précision des mesures spectroscopiques. A l'heure actuelle, avec une incertitude relative record de 2×10^{-14}, elles sont les plus précises de toute la physique. De manière parallèle, les théoriciens ont non seulement effectué des calculs toujours plus précis dans le cadre des théories existantes, mais ils ont dû à plusieurs reprises changer les bases mêmes de la théorie pour parvenir à un accord satisfaisant.

1.1 Hydrogène de Schrödinger

Le premier chapitre de l'histoire du spectre de l'hydrogène est bien connu : des expérimentateurs comme Angstrom, Lyman ou Paschen ont déterminé à l'aide de spectromètres à réseau les longueurs d'ondes λ_{mn} des raies d'absorption de l'hydrogène mono-atomique avec une précision de l'ordre de l'Angström. Balmer montre qu'il existe une formule empirique qui permet de les retrouver toutes à partir d'une constante multiplicative ajustable Ry (la constante de Rydberg) et de la donnée de deux nombres entiers m et n :

$$\frac{1}{\lambda_{mn}} = R_y(\frac{1}{m^2} - \frac{1}{n^2}) \tag{9.1}$$

Bohr, en 1913, retrouve cette formule phénoménologique en ayant l'intuition que les atomes ont des niveaux d'énergie stables obéissant à des règles simples de quantification, et que les raies observées correspondant à des transitions entre ces niveaux d'énergie. Il arrive même à exprimer la constante de Rydberg R_y à partir des constantes déjà connues, comme h, c et les masses des particules : l'accord avec les résultats expérimentaux est excellent, ce qui assure le succès de sa théorie, même si ses bases sont relativement fragiles.

L'équation de Schrödinger, établie en 1926, permet de retrouver le même résultat sur des bases solides. Rappelons en les principaux résultats :

L'invariance par rotation du potentiel coulombien permet de mettre les fonctions d'onde du système en coordonnées sphériques sous la forme :

$$\psi(r, \theta, \phi) = \phi_{n,l}(r) Y_{l,m}(\theta, \phi) \tag{9.2}$$

où les fonctions $Y_{l,m}(\theta, \phi)$ sont les harmoniques sphériques, fonctions propres du carré du moment cinétique orbital $\hat{\vec{L}}^2$ avec la valeur propre $l(l+1)\hbar^2$, et de la projection du moment cinétique sur l'axe Oz, $\hat{L}_z$, avec la valeur propre $m\hbar$. Les états propres de l'atome d'hydrogène sont de deux types :

- les états du spectre discret, notés $|n, l, m >$, d'énergie :

$$E_{nlm} = -\frac{R_y hc}{n^2} \tag{9.3}$$

où la constante de Rydberg R_y est exprimée ici en "nombre d'ondes" (m^{-1}), et vaut :

$$R_y = \frac{1}{hc}\frac{\mu q^4}{32\pi^2\varepsilon_0^2\hbar^2} = \frac{1}{hc}\frac{\alpha^2}{2}\mu c^2 \tag{9.4}$$

n est un entier strictement positif quelconque, q la charge de l'électron, μ la masse réduite de l'électron, égale à $\frac{mM}{m+M}$, où m et M sont respectivement les masses de l'électron et du noyau de l'atome d'hydrogène, en l'occurrence du proton, et α la constante de structure fine :

$$\alpha = \frac{q^2\hbar c}{4\pi\varepsilon_0} \simeq \frac{1}{137,035000} \simeq 0,0072973525 \tag{9.5}$$

où seul le dernier chiffre indiqué est affecté d'une incertitude.

- les états du spectre continu, $|E, l, m >$, qui ont une énergie E positive quelconque, et qui sont les états de diffusion qui permettent de calculer les caractéristiques de la collision entre un électron incident et une charge ponctuelle fixe. On trouvera dans [11] tous les détails sur les propriétés de ces différentes fonctions d'onde.

Les états $|n, l, m >$ et $|E, l, m >$ sont fortement dégénérés en énergie, l pouvant prendre n valeurs entières comprises entre 0 et $n-1$ pour le spectre discret, et n'importe quelle valeur pour le spectre continu, et m pouvant prendre $2l+1$ valeurs entières comprises entre $-l$ et $+l$. La dégénérescence en m est liée à l'invariance par rotation autour du centre de force. La dégénérescence en l est liée à la symétrie particulière du potentiel Coulombien. Cette symétrie se manifeste aussi dans le problème classique équivalent, caractérisé par l'existence d'une constante du mouvement supplémentaire, le "vecteur de Runge-Lenz", en plus du moment cinétique $\overrightarrow{L}$. La constance de ce vecteur traduit le fait que, dans un potentiel en $1/r$, les orbites se bouclent sur elles-mêmes au bout d'un tour.

La notation traditionnelle d'un état $|n, l, m >$ est na, où a est la lettre s, p, d, f, g, ... pour les valeurs de l 0,1,2,3,4, ... La valeur de m n'est en général pas spécifiée.

1.2 Hydrogène de Dirac

En utilisant des techniques spectroscopiques de plus grande résolution, et notamment grâce à l'utilisation des interféromètres de Fabry-Perot, les expérimentateurs ont observé que les raies de l'hydrogène sont souvent formées de doublets, appelés doublets de structure fine, avec des écarts en fréquence de l'ordre du GHz. Sommerfeld, en introduisant des corrections relativistes à la théorie de Bohr, avait rendu compte dès 1916 de certains de ces effets. En 1925, Uhlenbeck et Goudsmit attribuent à l'électron un moment cinétique intrinsèque, ou spin, et un moment magnétique associé qui intervient dans la détermination des énergies de l'atome d'hydrogène. Cette hypothèse ad-hoc permet de rendre compte de toute la complexité des spectres trouvés par les expérimentateurs. Cette construction théorique quelque peu complexe, dans laquelle se produisent parfois des coïncidences énergétiques apparemment accidentelles, retrouve unité et simplicité lorsqu'en 1928 Dirac établit sur des bases solides une théorie à la fois quantique et relativiste. Il en déduit l'existence du spin de l'électron et ses propriétés magnétiques, ainsi que les états et énergies propres de l'hydrogène, avec les résultats suivants, pour ce qui concerne le spectre discret : les états propres, notés $|n, l, j, m_j >$ ont pour énergie :

$$E_{n,l,j,m_j} = mc^2 \left[\left(1 + \left(\frac{\alpha}{n - j - \frac{1}{2} + \sqrt{(j+\frac{1}{2})^2 - \alpha^2}} \right)^2 \right) - 1 \right] \quad (9.6)$$

$$\approx -\frac{R_y hc}{n^2} \left[1 + \frac{\alpha^2}{n} \left(\frac{1}{j+\frac{1}{2}} - \frac{3}{4n} \right) \right] \quad (9.7)$$

au second ordre en α^2. $|n, l, j, m_j >$ est en outre vecteur propre du carré du moment cinétique orbital $\hat{\vec{L}}^2$ avec la valeur propre $l(l+1)\hbar^2$, du carré du moment cinétique électronique total (orbital+spin : $\hat{\vec{J}} = \hat{\vec{L}} + \hat{\vec{S}}$), $\hat{\vec{J}}^2$, avec la valeur propre $j(j+1)\hbar^2$, et de la projection du moment cinétique électronique total sur l'axe Oz, $\hat{J}_z$, avec la valeur propre $m_j\hbar$. l prend toujours toutes les valeurs entières possibles entre 0 et $n-1$, j les deux valeurs $l - 1/2$ et $l + 1/2$, et m_j toutes les valeurs demi-entières possibles entre $-j$ et $+j$. Notons qu'il y a toujours dégénérescence des niveaux d'énergie : en l (qui peut prendre deux valeurs $l \pm 1/2$ pour une valeur de j donnée) à cause de la symétrie particulière du potentiel coulombien, et en m_j, à cause

de l'aspect central du potentiel. Ces niveaux d'énergie coïncident bien avec les observations expérimentales pour ce qui concerne les niveaux excités de l'atome. Leur notation traditionnelle est nA_j avec A=S,P,D...

1.3 Structure hyperfine

Le proton formant le noyau de l'hydrogène intervient aussi dans l'énergie de l'atome : il a un moment cinétique $\hat{\vec{I}}$, donc un moment magnétique nucléaire qui interagit avec le moment magnétique de l'électron. Nous étudierons cette interaction plus en détail dans le paragraphe (2.3). Les états propres de l'hydrogène en présence de cette interaction sont du type $|n, l, j, f, m_f >$, vecteur propre commun au carré du moment cinétique orbital $\hat{\vec{L}}^2$ avec la valeur propre $l(l+1)\hbar^2$, du carré du moment cinétique électronique total orbital+spin $\hat{\vec{J}}^2$ avec la valeur propre $j(j+1)\hbar^2$, du carré du moment cinétique atomique total (orbital+spin électronique+spin nucléaire $\hat{\vec{F}} = \hat{\vec{L}} + \hat{\vec{S}} + \hat{\vec{I}}$), $\hat{\vec{F}}^2$, avec la valeur propre $f(f+1)\hbar^2$, et de la projection du moment cinétique atomique total sur l'axe Oz, $\hat{F}_z$, avec la valeur propre $m_f\hbar$. Le noyau de l'hydrogène étant un proton de spin $I = 1/2$, les valeurs possibles de f sont $j - 1/2$ et $j + 1/2$. A cause de l'invariance par rotation du problème, il y a toujours nécessairement dégénérescence en m_f des niveaux d'énergie.

On en déduit en particulier que l'état fondamental $n = 1$ (donc $l = 0$), qui n'a pas de structure fine car j ne peut y prendre que la valeur $j = 1/2$, possède une "structure hyperfine", car f peut prendre les deux valeurs $f = 0$ et $f = 1$. L'état fondamental se dédouble en deux sous-niveaux espacés de 1,4204057GHz, structure qui a été mesurée avec une très grande précision. Mentionnons en passant que les radio-astronomes utilisent la détection de transitions spontanées entre ces deux sous-niveaux dans l'hydrogène interstellaire (la longueur d'onde correspondante est égal à 21cm) pour déterminer la répartition de l'hydrogène dans l'univers.

Dans les années 30, théoriciens et expérimentateurs ne constatent aucun désaccord : il semble alors à tous que la théorie de Dirac et la prise en compte des effets magnétiques du noyau permettent de résoudre définitivement le problème de l'atome d'hydrogène.

1.4 Hydrogène de Lamb

La théorie de Dirac implique l'existence d'une dégénérescence entre niveaux de même valeur de j mais de valeurs différentes de l. En particulier la multiplicité $n = 2$ ne doit comporter que deux niveaux d'énergie, les niveaux $2S_{1/2}$ ($|n = 2, l = 0, j = 1/2, m_j >$) et $2P_{1/2}$ ($|n = 2, l = 1, j = 1/2, m_j >$) étant dégénérés, et séparés du niveau $2P_{3/2}$ ($|n = 2, l = 1, j = 3/2, m_j >$), si on néglige l'effet, très faible, dû à l'existence du spin nucléaire. En 1938, différents expérimentateurs remarquent dans les spectres mesurés avec la plus grande résolution des " épaulements " dans les raies aboutissant à la multiplicité $n = 2$ qui peuvent laisser suggérer que la dégénérescence entre niveaux prévue par Dirac n'est pas totalement exacte. En 1950, W. Lamb réalise des mesures spectroscopiques de résolution encore meilleure par une méthode nouvelle, qui s'est développée dans le sillage des recherches sur les radars effectuées pendant la deuxième guerre mondiale : il utilise des sources de rayonnement radiofréquence, et non pas optiques, pour induire directement des transitions entre les sous-niveaux eux-mêmes sur un jet d'atomes d'hydrogène se propageant dans une enceinte à vide.

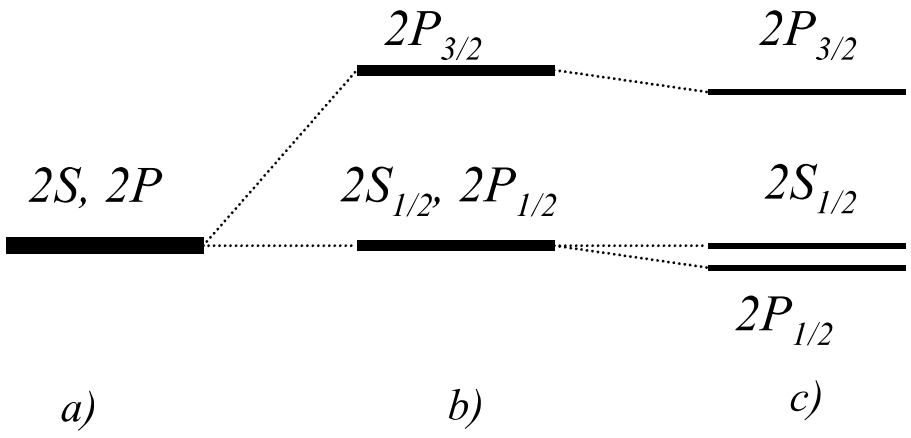

Fig. 9.1: Structure de l'ensemble des niveaux de nombre quantique principal $n = 2$ dans l'hydrogène : a) d'après la théorie de Schrödinger. b) d'après la théorie de Dirac c) en tenant compte des effets dus au couplage avec le champ électro-magnétique quantifié

La figure 9.1 donne la position des niveaux d'énergie de l'hydrogène caractérisés par un nombre quantique principal n=2 ("multiplicité" $n = 2$). D'après la théorie de Schrödinger, ce niveau est totalement dégénéré, et il

n'existe qu'une fréquence de transition, donc une seule raie, entre le niveau fondamental et ce niveau d'énergie : c'est la raie appelée Balmer α. D'après la théorie de Dirac, le niveau n=2 se subdivise en deux sous-niveaux d'énergies légèrement différentes, séparés d'environ 10,1 GHz, soit quelques millionièmes de la fréquence de la raie $Balmer_\alpha$. L'expérience de Lamb confirme les soupçons des spectroscopistes, et montre que les niveaux $2S_{1/2}$ et $2P_{1/2}$ sont en fait non dégénérés. Il en mesure précisément l'écart, que l'on appelle maintenant " déplacement de Lamb ", trouvé égal à 1,05712 GHz. Cet écart n'est pas explicable par l'existence du spin nucléaire, qui crée dans ce niveau une structure hyperfine beaucoup plus petite. Il faut alors admettre que la description de Dirac de l'atome d'hydrogène est insuffisante : celui-ci ne peut pas être considéré isolément du monde extérieur ; il interagit nécessairement avec le champ électromagnétique quantifié qui l'entoure. Cette interaction a plusieurs conséquences : elle déstabilise les niveaux excités de l'atome, c'est l'émission spontanée, mais aussi elle en modifie légèrement l'énergie, par un "effet Stark induit par les fluctuations du vide" (voir l'effet Stark dans la section (4.2)). Les calculs effectués dans le cadre de cette théorie permirent dès les années 50 de retrouver l'écart énergétique mesuré dans l'expérience de Lamb.

1.5 L'hydrogène au début du 21eme siècle

Avec l'arrivée des lasers à partir des années 60, les techniques expérimentales ont fait de gigantesques progrès, avec l'utilisation de lasers de plus en plus monochromatiques pour induire les transitions, la mise au point de nouvelles techniques permettant de réduire la largeur intrinsèque des raies spectrales, et le perfectionnement des méthodes de mesures des fréquences des transitions. Ces améliorations ont permis de faire gagner en 40 ans un facteur 10^5 à la précision des mesures spectroscopiques. La fréquence de la transition Lyman α entre les niveaux $1S_{1/2}f = 0$ et $2S_{1/2}f = 0$ a été mesurée en 2000 à la valeur suivante :

$$\frac{E_{Lyman\alpha}}{h} = 2466061413187103Hz \tag{9.8}$$

avec une incertitude absolue de 46 Hz. Avec une incertitude relative de 2×10^{-14}, c'est la mesure la plus précise de toute la physique ! On a aussi pu mesurer le déplacement de Lamb du niveau fondamental de l'hydrogène, qui est une très faible correction à l'énergie totale du niveau, et non pas une levée de dégénérescence entre niveaux proches, plus facile à mesurer.

On a pu ainsi déterminer la valeur expérimentale de la constante de Rydberg avec une précision relative de 8×10^{-12} :

$$R_y = 109737,315685 cm^{-1} \tag{9.9}$$

Parallèlement, les calculs d'énergie effectuées dans le cadre de la théorie des champs, extrêmement complexes, sont de plus en plus précis, grâce à l'utilisation d'ordinateurs toujours plus puissants. En dépit de cet accroissement phénoménal de la précision des mesures, il n'y a pour l'instant pas d'écart réellement significatif entre théorie et expérience. La précision atteinte à l'heure actuelle est telle qu'il faut maintenant tenir compte des caractéristiques détaillées du proton.

2. Structure des atomes à un électron

2.1 Electron sans spin

Les atomes alcalins (Li, Na, Rb, K, Cs et Fr) peuvent être considérés à une bonne approximation comme des atomes dans lequel seul l'électron le plus périphérique est responsable des énergies du système, les autres électrons (ayant une structure de gaz rare) et le noyau formant un "coeur" d'extension r_c non négligeable, créant un potentiel moyen central $V(r)$ dans lequel évolue cet électron périphérique. Ce potentiel diffère fortement du potentiel Coulombien pour $r \leq r_c$, puis tend vers celui-ci pour $r \gg r_c$.

A cause du caractère central du potentiel, les états propres d'un tel système sont toujours du type $|n, l, m >$, et les fonctions propres s'écrivent comme indiqué en (1.3). Elles ont la parité $(-1)^l$ vis à vis du changement $\vec{r} \to -\vec{r}$. Les énergies des états liés, notés na (a=s,p,d,..) comme pour l'hydrogène, s'écrivent maintenant :

$$E_{nlm} = -\frac{R_y hc}{(n - \delta_{n,l})^2} \tag{9.10}$$

où le coefficient $\delta_{n,l}$ est appelé le "défaut quantique". Il est responsable d'une levée de dégénérescence en l, comme on pouvait s'y attendre pour un potentiel différent du potentiel coulombien. Le défaut quantique varie lentement avec n et fortement avec l. Sa valeur est liée à l'interaction de l'électron périphérique avec le coeur. Il est de l'ordre de quelques unités pour les états de petites valeurs de l, qui ont une probabilité de présence non négligeable

dans la zone du coeur : pour le sodium, il vaut environ 1,35 pour les états S, et 0,86 pour les états P. Pour le césium, qui a un coeur beaucoup plus étendu, il vaut environ 4,05 pour les états S et 3,57 pour les états P. Il est proche de zéro pour les grandes valeurs de l ($l > 1$ pour le sodium, $l > 2$ pour le césium), c'est à dire pour les états "non-pénétrants" qui ressemblent alors fortement aux états correspondants de l'hydrogène, et qui ne sont que légèrement perturbés par un effet de polarisation du coeur par l'électron extérieur. Les électrons du coeur ayant rempli les couches profondes, la valeur de n pour l'état fondamental est 2 pour le lithium, 3 pour le sodium, ..., 6 pour le césium. Pour de tels atomes, il existe une "transition préférentielle" entre le niveau S fondamental et le premier niveau P excité, appelée *raie de résonance*, qui joue un rôle important car elle est caractérisée par une force d'oscillateur très proche de 1. Elle est aussi bien isolée des autres transitions du même alcalins, et située dans le visible ou le proche infra-rouge, à des longueurs d'onde où l'on dispose de sources lasers accordables performantes (lasers à colorant, laser au saphir dopé titane ou laser semi-conducteur). Elles sont les transitions préférées des expérimentateurs de physique atomique et d'optique quantique.

2.2 Effet du spin électronique : structure fine

L'électron périphérique a un moment cinétique de spin $\hat{\vec{S}}$. Soit $\hat{\vec{J}} = \hat{\vec{L}} + \hat{\vec{S}}$ le moment cinétique électronique total. L'invariance par rotation du système implique que les états propres de l'atome sont aussi vecteurs propres de $\hat{\vec{J}}^2$ avec la valeur propre $J(J+1)\hbar^2$, et de $\hat{J}_z$ avec la valeur propre $m_j\hbar$. τ est la liste des autres nombres quantiques nécessaires à la caractérisation complète de l'état. On a en outre $J = l \pm 1/2$.

Si l'on tient compte de l'existence du moment magnétique de l'électron et des premières corrections relativistes à l'équation de Schrödinger, il est nécessaire d'ajouter à l'hamiltonien coulombien différents termes (voir [12] p.1203), environ α^2 fois plus petits que le terme coulombien. Le terme qui est en général le plus important est appelé "couplage spin-orbite" H_{S0}. Il vaut :

$$H_{S0} = \frac{1}{2m^2c^2}\frac{1}{r}\frac{dV}{dr}\hat{\vec{L}}.\hat{\vec{S}} \tag{9.11}$$

On peut le comprendre classiquement en considérant l'interaction entre le moment magnétique de l'électron et le champ magnétique motionnel vu par

l'électron en déplacement dans le champ coulombien électrostatique. Cette image physique simple donne H_{S0} à un facteur 2 près. Dans le cas des atomes alcalins, les éléments de matrice de H_{S0} sont petits, et on peut déterminer leur effet par un calcul de perturbation des niveaux $|n, l, m >$. La restriction de H_{S0} au sous-espace sous tendu par les états dégénérés $|nlm >$ correspondant à une valeur donnée de n et de l peut s'écrire :

$$H_{S0} = a\hat{\vec{L}}.\hat{\vec{S}} = \frac{a}{2}(\hat{\vec{J}}^2 - \hat{\vec{L}}^2 - \hat{\vec{S}}^2) \tag{9.12}$$

Ce terme déplace les niveaux de la quantité $\frac{a}{2}\left(J(J+1) - l(l+1) - s(s+1)\right)$. Il n'affecte pas les niveaux nS. Pour $l \geq 1$, il y a deux valeurs possibles de J, $l \pm 1/2$, et les états propres s'écrivent, comme pour l'hydrogène $|n, l, J = l \pm 1/2, m_j >$. Ils ont pour énergie respectivement $E_{nl} + a\hbar^2 l/2$ et $E_{nl} - a\hbar^2(l+1)/2$ et sont notés nA_J. L'écart énergétique entre ces deux niveaux vaut donc $a\hbar^2(l + 1/2)$ et s'appelle intervalle de structure fine. Il est d'autant plus grand que l'alcalin est plus lourd : ainsi les raies de résonance des alcalins sont en fait doubles (doublet de structure fine). Pour le sodium, les longueurs d'ondes des raies $3S_{1/2} - 3P1/2$ et $3S_{1/2} - 3P3/2$ sont respectivement égales à $589,6nm$ et $589,0nm$. Pour le césium, les longueurs d'ondes des raies $6S_{1/2} - 6P1/2$ et $6S_{1/2} - 6P3/2$ sont respectivement égales à $890nm$ et $859nm$. On remarque que la structure fine est beaucoup plus grande dans les alcalins que pour les niveaux correspondants de l'atome d'hydrogène.

2.3 Effet du spin nucléaire : structure hyperfine

Le noyau de l'atome a un moment cinétique de spin $\hat{\vec{I}}$, et un moment magnétique associé. Soit $\hat{\vec{F}} = \hat{\vec{I}} + \hat{\vec{J}}$ le moment cinétique total de l'atome. L'invariance par rotation du système implique que les états propres de l'atome sont vecteurs propres de $\hat{\vec{F}}^2$ avec la valeur propre $F(F+1)\hbar^2$, et de $\hat{F}_z$ avec la valeur propre $m_f\hbar$. F prend toutes les valeurs entières comprises entre $|J - I|$ et $J + I$.

Le moment magnétique du noyau interagit avec le champ magnétique créé par l'électron. Pour en rendre compte, il est nécessaire d'ajouter à l'hamiltonien coulombien un terme dit de "couplage hyperfin" H_{HF} (voir [12] p.1237). La contribution la plus importante à ce terme vaut :

$$H_{HF} = A\hat{\vec{I}}.\hat{\vec{S}} \tag{9.13}$$

Ce terme, dit "de contact", décrit l'interaction du moment magnétique de spin de l'électron avec le champ magnétique produit par le moment magnétique du proton, et existant à l'intérieur de celui-ci. Il est donc non nul seulement à l'emplacement du proton. Son effet sur les niveaux d'énergie peut être déterminé par un calcul de perturbation des niveaux $|n, l, J, m_j >$. Les seuls états qui seront affectés par le couplage hyperfin sont ceux ayant une probabilité de présence non nulle à l'emplacement du proton, c'est-à-dire les états S (de $l = 0$, donc de $J = 1/2$). Ces niveaux se dédoublent en deux niveaux caractérisés par les valeurs $F = I - 1/2$ et $F = I + 1/2$, avec un écart énergétique donné par :

$$\Delta E_{nS_{1/2}} = A\hbar^2(I + \frac{1}{2}) \tag{9.14}$$

Cette structure vaut 1,772GHz dans le sodium. Elle est donc du même ordre de grandeur que dans l'hydrogène. Le taux d'émission spontanée du niveau supérieur vers le niveau inférieur de la structure hyperfine est très faible, à cause de la petitesse du facteur ω^3 qui y figure. On peut donc considérer que les deux niveaux sont stables, et donc la largeur naturelle de la transition entre ces deux niveaux est négligeable. C'est la raison pour laquelle ces transitions ont un grand intérêt pour la métrologie. En particulier la transition de structure hyperfine du césium sert à l'heure actuelle à définir le Hz ou la seconde. On a par définition de l'unité :

$$\Delta E_(6S_{1/2}F = 3 \rightarrow F = 4) = 9192631770Hz \tag{9.15}$$

Lorsqu'on s'élève dans les niveaux, les structures fines et hyperfines décroissent proportionnellement à n^{-3}. Elles deviennent donc de plus en plus difficilement observables.

2.4 l'exemple du Rubidium

La figure(9.2) donne la structure détaillée des niveaux d'énergie et des longueurs d'onde de transition dans le Rubidium 87, un des alcalins très utilisés par les expérimentateurs de physique atomique. Le niveau fondamental $5S$ (moment cinétique orbital $\ell = 0$, moment cinétique de spin électronique $S = 1/2$, moment cinétique électronique total $J = 1/2$), est subdivisé en deux niveaux de structure hyperfine (moment cinétique total de l'atome $F = 0$, $F = 1$) à cause du moment cinétique $I = 3/2$ de son noyau. L'écart entre ces deux niveaux $(6,8GHz)$ est dans le domaine des microondes. Le premier

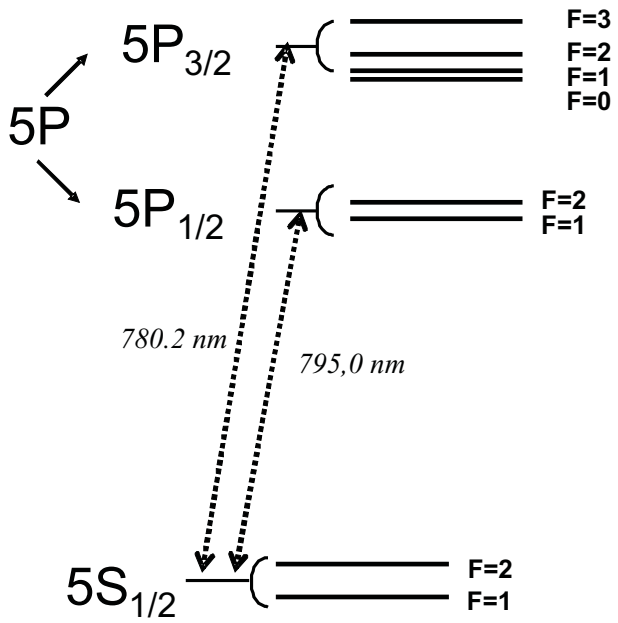

Fig. 9.2: Structure du niveau fondamental et du premier niveau électronique excité de l'atome de Rubidium

niveau électronique excité $5P$ ((moment cinétique orbital $\ell = 1$) est subdivisé en deux niveaux de structure fine (moment cinétique électronique total $J = 1/2$ et $J = 3/2$), chacun étant lui-même subdivisé en sous-niveaux de structure hyperfine extrêmement proches ($817MHz$ entre les sous niveaux du $5P_{1/2}$, 72 157 et $267MHz$ respectivement entre les niveaux $F = 0, 1, 2, 3$ du $5P_{3/2}$. Les différents sous-niveaux du niveau $5S$ et du niveau $5P$ sont reliés par des transitions optiques dans le proche infra-rouge. Ils sont donc aisément excitables par un laser accordable à Titane-saphir. Les deux groupes de transitions optiques (appelées D1 pour la transition $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{1/2}$ et D2 pour la transition $5S_{1/2} \rightarrow 5P_{3/2}$) sont séparées de 14.8 nanomètres (intervalle de structure fine). Il faut enfin prendre garde que chaque niveau hyperfin de F donné est dégénéré et comporte $2F + 1$ sous-niveaux Zeeman, dont certains peuvent être peuplés individuellement en utilisant des techniques de pompage optique, et dont on peut lever la dégénérescence en appliquant des champs électriques ou magnétiques.

3. Atomes à plusieurs électrons

La détermination des niveaux d'énergie des atomes comportant plus d'un électron est très complexe. L'hamiltonien du système s'écrit :

$$\hat{H}_{at} = \sum_i \left(\frac{p_i^2}{2m} - \frac{q^2}{4\pi\varepsilon_0 r_i} \right) + \sum_{i<j} \frac{q^2}{4\pi\varepsilon_0 |\vec{r}_i - \vec{r}_j|} + \hat{V}_{SO} \tag{9.16}$$

Il tient compte, en plus de l'attraction que le noyau exerce sur chaque électron de position $\vec{r}_i$ et d'impulsion $\vec{p}_i$, de la répulsion mutuelle entre ceux-ci, ainsi que de l'ensemble des interactions magnétiques de type spin-orbite entre les spins électroniques et le champ magnétique motionnel (terme $\hat{V}_{S0}$). En outre, l'indiscernabilité des électrons doit être prise en compte, sous la forme du "principe d'exclusion de Pauli", qui interdit l'existence de nombreux niveaux. Nous négligerons ici l'effet sur les énergies des interactions entre moments magnétiques des électrons, et entre les électrons et le moment magnétique du noyau, qui est beaucoup plus faible que les termes considérés ici.

3.1 Approximation des électrons indépendants

Une première approximation consiste à écrire :

$$\hat{H}_{at} = \sum_i \left(\frac{p_i^2}{2m} + \hat{W}(r_i) \right) \tag{9.17}$$

Les électrons sont indépendamment couplés à un potentiel moyen central $\hat{W}(r_i)$ qui englobe l'énergie électrostatique d'interaction avec le noyau et l'énergie moyenne d'interaction entre un électron donné et l'ensemble des autres électrons. Ce terme d'interaction est déterminé par une approche de type variationnelle qui minimise l'effet des termes négligés dans l'hamiltonien initial. On est donc en présence de plusieurs "atomes à un électron", décrits dans la partie précédente par des états de type $|nlm>$, dont on ajoute les énergies et multiplie les fonctions d'onde. Le terme $\hat{W}(r_i)$ change évidemment lorsqu'on passe d'un atome à N électrons à l'atome suivant dans la classification périodique, à $N+1$ électrons.

Le principe de Pauli empêche que l'on mette plus de deux électrons de valeur de m_s égales à $\pm 1/2$ dans le même état électronique. On aura donc 2 électrons ns, 6 électrons np (2 valeurs de m_s et 3 valeurs de m_l) , 10 électrons nd ... L'ensemble des électrons de l'atome est répertorié sous la forme d'une

"configuration". Par exemple la configuration fondamentale (de plus basse énergie) du Néon (10 électrons) est formée de 2 électrons dans l'état 1s, 2 dans l'état 2s, 6 dans l'état 2p, et s'écrit $1s^2 2s^2 2p^6$. Toutes les "couches" sont occupées, et l'atome ainsi formé constitue un système fortement lié, de grande énergie d'excitation et d'ionisation : c'est un gaz rare. Le sodium, à 11 électrons, a une configuration qui s'écrit $1s^2 2s^2 2p^6 3s$: c'est un alcalin. L'électron rajouté est en présence d'un système très lié de 10 électrons qui forme un "coeur". Les niveaux excités du système global ne mettent en jeu que les excitations de ce dernier électron, et pas celles du coeur. C'est pourquoi l'approximation d'atome à un électron est valable dans ce cas. Nous ne ferons pas dans ce bref rappel la nomenclature des configurations des différents atomes, la construction de la classification périodique qui en résulte, et la prédiction des propriétés physiques des différents éléments. Cette discussion est faite en détail dans les ouvrages de physique atomique comme [**?**].

3.2 Effet des interactions entre électrons

L'hamiltonien total du système atomique peut se mettre sous la forme :

$$\hat{H}_{at} = \sum_i \left(\frac{p_i^2}{2m} + \hat{W}(r_i) \right) + \hat{V}_{correl} + \hat{V}_{SO} \tag{9.18}$$

avec

$$\hat{V}_{correl} = \sum_i \left(-\frac{q^2}{4\pi\varepsilon_0 r_i} - \hat{W}(r_i) \right) + \sum_{i<j} \frac{q^2}{4\pi\varepsilon_0 |\vec{r}_i - \vec{r}_j|} \tag{9.19}$$

Ce terme dit de corrélation électronique décrit la partie des interaction non magnétiques entre électrons qui n'a pas été prise en compte dans le potentiel moyen $\hat{W}(r_i)$. Les deux termes $\hat{V}_{correl}$ et $\hat{V}_{SO}$ sont d'importance relative variable selon les atomes. Leur prise en compte est complexe, car ils ne peuvent généralement pas être considérés tous deux comme de petites perturbations. Comme nous l'avons dit dans l'introduction, le problème possède une invariance par rotation globale autour du noyau, ce qui entraîne que $\hat{H}$ commute avec le moment cinétique total :

$$\hat{\vec{J}} = \sum_i \left(\hat{\vec{l}}_i + \hat{\vec{s}}_i \right) \tag{9.20}$$

et donc les niveaux de l'atome peuvent être répertoriés par les nombres quantiques J et m_J relatifs à ce moment cinétique total.

Si le terme $\hat{V}_{SO}$ est négligeable, il faut d'abord tenir compte du seul effet des corrélations. L'hamiltonien résultant commute avec le moment cinétique orbital total de tous les électrons $\hat{\vec{L}} = \sum \hat{\vec{l}}_i$, ainsi qu'avec le moment cinétique total de spin $\hat{\vec{S}} = \sum \hat{\vec{s}}_i$. On peut répertorier les niveaux d'énergie par les nombres quantiques S, m_S, L, m_L relatifs à ces moment cinétiques. Le terme $\hat{V}_{SO}$ est ensuite traité comme une perturbation opérant sur ces niveaux, et J prend toutes les valeurs comprises entre $|L-S|$ et $L+S$. C'est le "couplage L-S", dans lequel le niveau d'énergie est noté ${}^{2S+1}[A]_J$ (A prenant les valeurs S,P,D,F...). Les alcalins sont dans ce cas, et le niveau fondamental du sodium doit s'écrire en toute rigueur $1s^2 2s^2 2p^6\ {}^2S_{1/2}$.

Si le terme $\hat{V}_{correl}$ est négligeable, il faut d'abord tenir compte du seul effet des interactions magnétiques de type spin-orbite. Le hamiltonien résultant est toujours une somme d'hamiltoniens à un électron et commute avec le moment cinétique total de chaque électron $\hat{\vec{J}}_i = \hat{\vec{l}}_i + \hat{\vec{s}}_i$. On peut répertorier les niveaux d'énergie par les nombres quantiques j, m_j de chaque électron. Le terme $\hat{V}_{correl}$ est ensuite traité comme une perturbation opérant sur ces niveaux. C'est le "couplage j-j", dans lequel le niveau d'énergie est noté $(j_1, j_2, ...)_J$.

3.3 Atome d'Hélium

L'hamiltonien s'écrit dans le cas de deux électrons :

$$\hat{H}_{at} = \frac{p_1^2}{2m} + \frac{p_2^2}{2m} - \frac{q^2}{4\pi\varepsilon_0 r_1} - \frac{q^2}{4\pi\varepsilon_0 r_2} + \frac{q^2}{4\pi\varepsilon_0 |\vec{r}_1 - \vec{r}_2|} + \hat{V}_{SO} \tag{9.21}$$

Même en négligeant le terme de couplage spin-orbite, il est impossible de trouver de manière rigoureuse les énergies propres d'un tel hamiltonien, et il faut utiliser des méthodes approchées (voir [11]). Nous allons ici appliquer à titre d'exemple à ce "problème à 3 corps" les approximations que nous venons d'introduire (voir [12] p1406).

A l'approximation des électrons indépendants, les configurations de l'hélium correspondant à des états liés s'écrivent (1s,nl). Les configurations (n'l',nl) où les deux électrons sont excités se trouvent avoir des énergies supérieures à la première limite d'ionisation du système, où un électron est dans le continuum et l'autre dans l'état fondamental 1s. Le couplage entre l'état doublement excité et le continuum qui l'entoure donne lieu au phénomène d'auto-ionisation, qui déstabilise le niveau (voir [3] p. 37). La configuration

fondamentale est $1s^2$, qui n'est pas dégénérée, car elle comporte en vertu du principe de Pauli, deux électrons de spins opposés. Les premières configurations excitées $1s2s$ et $1s2p$ ont une dégénérescence respective de 4 et 12. Elles sont séparées du niveau fondamental par une énergie égale environ à $20,6eV$, donc nettement plus grande que dans l'hydrogène $(10,2eV)$.

Si l'on tient compte des interactions entre électrons, le terme le plus important pour l'hélium est le terme de corrélation électronique $\hat{V}_{correl}$. Les nouveaux niveaux d'énergie, appelés *termes spectraux*, correspondront alors à des valeurs spécifiques du moment cinétique orbital total L des électrons, et de leur spin total S, addition de deux spins 1/2, et qui prend donc les deux valeurs $S = 0$ ("état singulet", ou "para-hélium") et 1 ("états triplets", ou "ortho-hélium"). De la configuration $1s2s$ sont issus deux termes spectraux de $L = 0$ et de $S = 0, 1$, notés $(1s2s)^1S$ et $(1s2s)^3S$. Il en est de même de la configuration $1s2p$, dont sont issus les termes $(1s2p)^1S$ et $(1s2p)^3S$. Les levées de dégénérescence dues à cette interaction sont inférieures à 1eV.

Si on ajoute les premiers effets relativistes, et en particulier les couplages spin-orbite et les couplages spin-spin, seul le moment cinétique total J permet de répertorier les niveaux ainsi obtenus, que l'on nomme *multiplets*, notés ${}^{2S+1}A_J$. Le niveau fondamental n'est formé que d'un seul multiplet de $J = 0$, noté $(1s^2)^1S_0$. Il en est de même les termes issus de la configuration $1s2s$: $(1s2s)^1S_0$ et $(1s2s)^3S_1$. Par contre le terme ${}^3P$ se scinde en trois sous-niveaux de différentes valeurs de J, notés $(1s2p)^3P_0$, $(1s2p)^3P_1$ et $(1s2p)^3P_2$. Les distances entre ces multiplets sont beaucoup plus faibles, de l'ordre de $10^{-4}eV$.

4. Effet de champs extérieurs sur les niveaux atomiques

Nous allons maintenant voir quel est l'effet sur l'atome d'un champ électromagnétique extérieur, traité comme une contrainte qui n'est elle-même pas affectée par son interaction avec l'atome, et qui sera donc traitée comme une quantité classique. Nous nous restreindrons ici au cas simple d'un atome à un électron et en négligeant les effets liés au spin du noyau.

4.1 Champ magnétique statique : effet Zeeman

Le système formé d'un atome à un électron de coordonnées (r, θ, ϕ) en présence d'un champ magnétique statique $\vec{B}_0$, que nous supposerons aligné le long de l'axe Oz, est décrit par l'hamiltonien (voir [12] p839) :

$$\hat{H} = \hat{H}_{at} + \hat{H}_{dip-mag} + \hat{H}_{diam} \tag{9.22}$$

$$\hat{H}_{dip-mag} = -\mu_B(\hat{L}_z + g_e\hat{S}_z)B_0 \tag{9.23}$$

$$\hat{H}_{diam} = \frac{q^2B_0^2r^2sin^2\theta}{8m} \tag{9.24}$$

où $\mu_B = \frac{q\hbar}{2m}$ est le magnéton de Bohr, homogène à un moment magnétique, et g_e le facteur gyromagnétique de l'électron qui a une valeur très proche de 2. $\hat{H}_{dip-mag}$ apparaît comme l'énergie magnétique dans le champ extérieur du moment magnétique total du système (orbital et de spin) $\vec{M} = \mu_B(\vec{L} + g_e\vec{S})$. $\hat{H}_{diam}$ est un terme appelé "diamagnétique". Il provient du terme élevé au carré dans l'hamiltonien $(\vec{p} - q\vec{A})^2/2m$. On peut l'interpréter comme lié à la déformation de l'orbite électronique en présence du champ extérieur. Pour des champs magnétiques pas trop intenses, ce terme est négligeable devant le premier. En première approximation, nous traiterons le terme dipolaire magnétique comme une perturbation et nous négligerons le terme diamagnétique.

Nous avons vu que les états stationnaires d'un atome s'écrivent $|\tau, j, m_j >$ où τ est un ensemble de nombres quantiques. Les $2m_j + 1$ sous-niveaux (qualifiés souvent de "sous-niveaux Zeeman") sont dégénérés en énergie, à cause de l'invariance par rotation du système. Il faut donc appliquer la théorie des perturbations de niveaux dégénérés, c'est-à-dire à l'ordre le plus bas diagonaliser la perturbation dans le sous-espace de dégénérescence. On fait appel pour cela à l'important *théorème de Wigner-Eckart*, qui montre que la restriction de tout opérateur vectoriel $\hat{\vec{A}}$ à un sous-espace sous-tendu par les vecteurs $(|\tau, j, m_j >, m_j = -j, ..., j)$ est proportionnelle à l'opérateur moment cinétique $\hat{\vec{J}}$:

$$\hat{\vec{A}} = \alpha_{\tau,j}\hat{\vec{J}} \tag{9.25}$$

la constante de proportionnalité $\alpha_{\tau,j}$ dépendant du sous-espace considéré. Le moment magnétique total de l'atome, qui est un opérateur vectoriel, est donc proportionnel à la projection du moment cinétique sur Oz et s'écrit :

$$\hat{\vec{M}} = \frac{\mu_B}{\hbar}g_{\tau,j}\hat{\vec{J}} \tag{9.26}$$

la constante de proportionnalité, $g_{\tau,j}$ s'appelant *facteur de Landé*. Il en résulte que le terme $\hat{H}_{dip-mag}$, proportionnel à $\hat{J}_z$, est diagonal dans la base

$|\tau, j, m_j >$: la dégénérescence en m_j des niveaux d'énergie est levée (comme on pouvait s'y attendre puisque le système ne possède plus l'invariance par une rotation quelconque autour de l'origine), chaque sous-niveau Zeeman étant déplacé de la quantité $\mu_B g_{\tau,j} m_j B_0$, proportionnelle à l'amplitude du champ magnétique : c'est l'effet Zeeman. Le facteur de Landé se calcule grâce à la formule :

$$g_{\tau,j} = \frac{< \tau, j, m_j | \hat{\vec{M}} \cdot \hat{\vec{J}} | \tau, j, m_j >}{\mu_B \hbar j(j+1)} \tag{9.27}$$

La valeur moyenne du produit scalaire se calculant par une technique analogue à celle utilisée pour calculer $< \tau, j, m_j | \hat{\vec{L}} \cdot \hat{\vec{S}} | \tau, j, m_j >$ pour déterminer les déplacements de structure fine (paragraphe 2.2).

Le calcul précédent n'est valable que si le déplacement Zeeman des niveaux est petit devant l'intervalle de structure fine. Pour des valeurs plus grandes du champ magnétique, il faut diagonaliser l'hamiltonien d'interaction dipolaire magnétique dans le sous-espace sous-tendu par l'ensemble des niveaux de structure fine, et on n'a plus une simple dépendance linéaire du déplacement par rapport au champ magnétique.

L'approche présentée ici est valable même si le champ magnétique est inhomogène, pourvu qu'il varie peu sur des distances de l'ordre de la taille de l'édifice atomique. On obtient alors des déplacements énergétiques $\mu_B g_{\tau,j} m_j B_0(\vec{R}_{at})$, où $\vec{R}_{at}$ est la position du noyau de l'atome. Tout se passe comme si l'atome dans son ensemble était soumis à une force extérieure

$$\vec{F} = -\mu_B g_{\tau,j} m_j \vec{grad} \left(B_0(\vec{R}_{at}) \right) \tag{9.28}$$

C'est cette force qui est utilisée dans la célèbre expérience de Stern et Gerlach. D'une manière générale, elle aura pour effet d'attirer l'atome vers les points de l'espace où le module du champ magnétique est maximal ou minimal, selon le signe de m_j et de $g_{\tau,j} B_0(\vec{R}_a t)$. C'est le principe des *pièges magnétiques à atomes*, qui sont très utilisés dans les expériences de physique atomique, en particulier pour la production de condensats de Bose-Einstein. Si on utilise deux bobines identiques parcourues par des courants circulant en sens inverse, on obtient un dispositif piégeant les états de m_j strictement positif autour du point de champ nul équidistant des centres des deux bobines. En ce point les différents sous-niveaux Zeeman sont dégénérés, et il y a une probabilité non-nulle de transition entre niveau piégeant et non-piégeant.

Par des configurations de courants plus complexes (piège de Ioffé-Pritchard) on peut obtenir un effet de piégeage autour d'un point de champ non nul, où cet inconvénient n'existe pas.

4.2 Champ électrique statique : effet Stark

On considère maintenant le système formé d'un atome à un électron de coordonnées (r, θ, ϕ) en présence d'un champ électrostatique $\vec{E}_0$, que nous supposerons aussi aligné le long de l'axe Oz. Il est décrit par l'hamiltonien dipolaire électrique :

$$\hat{H} = \hat{H}_{at} - \hat{D}_z E_0 \tag{9.29}$$

où $\vec{\hat{D}} = q\vec{\hat{r}}$ est le moment dipolaire électrique de l'atome. L'opérateur $\vec{\hat{r}}$ changeant de signe dans un symétrie par rapport à l'origine, tout élément de matrice de cet opérateur entre états possédant la même parité dans ce changement est nul. Rappelons que cette parité n'est liée qu'au moment cinétique orbital, et coïncide avec la parité du nombre entier l.

Nous nous intéressons seulement au régime des champs faibles, où l'on peut traiter le terme dipolaire électrique comme une perturbation agissant sur un niveau de structure fine donné. Prenons tout d'abord le cas d'un atome qui n'est pas l'atome d'hydrogène, et où les niveaux de valeurs de l différentes sont non-dégénérés. Au premier ordre de la théorie des perturbations, le déplacement des niveaux s'obtient en diagonalisant la restriction de l'hamiltonien dipolaire électrique au sous-espace sous-tendu par les vecteurs $|n, l, j, m_j >, m_j = -j, ..., j$ qui sont tous de même parité : cette restriction est donc nulle, et il faut donc aller au second ordre de la théorie des perturbations pour trouver un résultat non nul : le déplacement des niveaux sous l'effet d'un champ électrostatique est donc *quadratique en* E_0. Il y a donc apparition d'une *polarisabilité statique* de l'atome, ce qui n'est pas étonnant puisque l'atome ne possède de dipôle moyen dans aucun de ses états propres. Le calcul détaillé du déplacement montre en outre qu'il ne dépend que de m_j^2, et ne lève donc pas totalement la dégénérescence des niveaux atomiques, à la différence de l'effet Zeeman : le champ électrique brise la symétrie par rotation, mais non pas l'invariance par renversement du sens du temps, responsable d'une dégénérescence double des niveaux d'énergie (dégénérescence de Kramers [16]).

La situation est différente pour l'hydrogène, et pour des déplacements de

niveaux grands devant la structure fine : il faut en effet diagonaliser dans ce cas la restriction de l'hamiltonien dipolaire électrique au sous-espace sous-tendu par les vecteurs $|n, l, m >, m_j = -l, ...l$, qui contient des vecteurs d'états des deux parités. On obtient alors un *effet Stark linéaire* en E_0 (voir [11], p.228), [12] p. 1267). Ce phénomène est liée à la symétrie supplémentaire de cet atome : classiquement, les orbites électroniques sont des ellipses d'excentricité non nulle, pour lesquelles la position de l'électron moyennée sur une révolution n'est pas l'origine. Ces orbites ont donc un dipôle électrique permanent, parallèle au vecteur de Runge-Lenz, dont l'énergie d'interaction avec le champ électrostatique varie linéairement avec celui-ci.

Ici aussi, le problème peut s'étendre au cas de champs inhomogènes, qui, comme pour l'effet Zeeman, induisent des forces sur les atomes, et qui sont utilisées pour les dévier. Malheureusement, on peut montrer que l'amplitude d'un champ électrostatique ne présente pas d'extrema dans l'espace vide de charges : on ne peut donc pas faire de piège à atome purement électrostatique.

4.3 Champ électromagnétique oscillant

Ce problème est traité en détail dans le cours "Photons et Atomes". Lorsque la longueur d'onde λ du champ électromagnétique, de pulsation ω, est grande devant la taille caractéristique de l'atome, on peut faire l'approximation dipolaire électrique, et négliger l'effet du champ magnétique de l'onde, ce qui revient à utiliser l'hamiltonien dipolaire électrique utilisé pour l'effet Stark. Pour des puissances modérées de l'onde électromagnétique, on peut utiliser la théorie des perturbations dépendant du temps au premier ordre. Les transitions entre niveaux $|a >$ et $|b >$ qui sont susceptibles d'être induites par cette onde doivent satisfaire d'une part à la condition de Bohr ($|E_a - E_b| = \hbar\omega$, et d'autre part à un ensemble de *règles de sélection*, qui donnent les niveaux pour lesquels il existe entre ces niveaux un élément de matrice non nul de $\vec{\hat{D}} \cdot \vec{\varepsilon}$, où $\vec{\varepsilon}$ est le vecteur unitaire de polarisation du champ utilisé. Comme nous l'avons vu dans la partie précédente, $|a >$ et $|b >$ doivent donc être en particulier de parité opposées, et donc les valeurs correspondantes des entiers l et l' caractérisant ces deux états doivent être de parités différentes. De plus le caractère vectoriel du dipôle atomique impose des conditions plus restrictives qui dépendent de la composante du dipôle concernée, donc de la polarisation $\vec{\varepsilon}$ de l'onde utilisée.

- Pour une onde "π", c'est-à-dire de polarisation linéaire parallèle à l'axe Oz (celui qui a permis d'introduire l'opérateur $\hat{J}_z$ et ses états propres), il n'y

de transition qu'entre états $|n, l, J, m_j >$ que si :

$$\Delta n \quad quelconque, \quad \Delta l = \pm 1, \quad \Delta J = 0, \pm 1 \quad \Delta m_j = 0 \tag{9.30}$$

la transition $J = 0 \rightarrow J' = 0$ étant exclue.

- Pour une onde "σ^+" (resp. "σ^-") , c'est-à-dire de polarisation circulaire tournant dans le sens positif (resp. négatif) autour de l'axe Oz, et quelle que soit la direction de propagation de l'onde (attention, il ne s'agit pas des polarisation droites et gauche habituelles, qui sont définies par rapport à la direction de propagation de l'onde), il n'y de transition que si :

$$\Delta n \quad quelconque, \quad \Delta l = \pm 1, \quad \Delta J = 0, \pm 1, \quad \Delta m_j = 1 \quad (resp. \quad \Delta m_j = -1) \tag{9.31}$$

Si on s'intéresse aux transitions entre sous-niveaux hyperfins, il faut y ajouter la condition $\Delta F = 0, \pm 1$ et remplacer la condition sur les Δm_j dépendant de la polarisation par la condition équivalente sur les Δm_F.

Les mêmes règles de sélection s'appliquent évidemment à l'émission spontanée, et limitent donc les canaux de désexcitation d'un atome excité. En particulier, dans certains atomes le premier état excité s, de l=0, n'a pas d'autre niveau situé plus bas dans l'échelle des énergies que le niveau fondamental, de $l = 0$ lui aussi : il n'y a alors pas de désexcitation possible par transition dipolaire électrique au premier ordre de la théorie des perturbations : ces niveaux se désexcitent par des canaux différents, moins efficaces, et ont donc une très longue durée de vie. on les qualifie de *niveaux métastables*. C'est en particulier le cas du niveau singulet $(1s2s)^1S_0$ de l'Hélium, dont la durée de vie est supérieure à la seconde, et du niveau $2S_{1/2}$ de l'hydrogène, dont la durée de vie est de $0,14s$. Dans ce dernier cas, il existe un niveau P inférieur, à cause du Lamb shift, mais il est très près du niveau S, et le taux d'émission spontanée correspondant est négligeable. Ces niveaux métastables se désexcitent par émission spontanée à deux photons, que l'on calcule en poussant le calcul perturbatif à l'ordre suivant.

10. ANNEXE : MATRICE DENSITÉ

Annexe rédigée avec David Guéry-Odelin

En Mécanique Quantique, on sait qu'un système isolé, ou bien un système soumis à des contraintes extérieures fixes, qui ne sont pas affectées par l'évolution du système, est décrit par un **vecteur d'état**. Mais ces situations sont loin de recouvrir toutes celles que l'on rencontre en physique. Comment décrire un système qui a interagi avec un autre, puis s'en est séparé, ou bien un système présentant dans sa préparation ou son évolution des éléments fluctuants, nécessitant l'utilisation de moyennes statistiques, ou bien encore un système qui n'est qu'une petite partie d'un ensemble plus important ?

L'**opérateur, ou matrice, densité** est l'outil qui permet de décrire toutes ces situations. Nous l'introduirons tout d'abord sur des systèmes dits "purs" pour lesquels la description en termes de fonction d'onde est aussi possible, puis nous l'étendrons aux autres situations.

1. Cas pur

1.1 Vecteur d'état

Par définition, dans un cas pur, la description du système se fait grâce à un vecteur d'état que nous développons ici sur la base des $\{|u_n\rangle\}$, vecteurs propres d'une observable donnée $\hat{M}$:

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n c_n(t)|u_n\rangle \qquad \text{avec} \qquad \sum_n |c_n(t)|^2 = 1.$$

Lorsqu'on mesure la quantité M, on obtient comme résultat la valeur propre a_n de l'opérateur $\hat{M}$ avec la probabilité $|c_n|^2$. Les coefficients c_n sont des *amplitudes de probabilité*. En vertu du principe de superposition, ces amplitudes

de probabilité peuvent interférer, une caractéristique qui n'a pas d'équivalent en physique classique.

L'évolution temporelle du vecteur d'état est donnée par l'équation de Schrödinger :

$$i\hbar\frac{d}{dt}|\psi(t)\rangle = \hat{H}(t)|\psi(t)\rangle,$$

où $\hat{H}(t)$ est l'hamiltonien du système. La valeur moyenne $\langle\hat{A}\rangle$ d'un opérateur quelconque $\hat{A}$ est :

$$\langle\hat{A}\rangle = \sum_{n,p} c_n^* c_p \langle u_n|\hat{A}|u_p\rangle = \sum_{n,p} c_n^* c_p A_{np}$$

1.2 Opérateur densité

L'opérateur densité est défini par :

$$\hat{\rho}(t) = |\psi(t)\rangle\langle\psi(t)|.$$

C'est l'opérateur hermitien de projection sur l'état décrivant le système. Remarquons immédiatement que l'arbitraire de phase de la fonction d'onde disparaît pour l'opérateur densité.

Les éléments de matrice de cet opérateur valent :

$$\rho_{np} = \langle u_n|\hat{\rho}|u_p\rangle = c_n^* c_p \tag{10.1}$$

La valeur moyenne d'un opérateur $\hat{A}$ s'exprime simplement grâce à l'opérateur densité :

$$\langle\hat{A}\rangle = \sum_{n,p} c_n^* c_p A_{np} = \sum_{np} \rho_{pn}\langle u_n|\hat{A}|u_p\rangle = \sum_p \langle u_p|\hat{\rho}(t)\hat{A}|u_p\rangle = Tr(\hat{\rho}(t)\hat{A}).$$

Remarquons que la valeur moyenne dépend linéairement de $\hat{\rho}$, alors qu'elle dépendait quadratiquement du vecteur d'état.

Il est élémentaire d'établir les propriétés suivantes de la matrice densité *pour un cas pur* :

$$\begin{aligned}
&Tr\hat{\rho}(t) = 1 \qquad \text{conservation de la probabilité totale,}\\
&\langle\hat{A}\rangle(t) = Tr(\hat{A}\hat{\rho}(t)) = Tr(\hat{\rho}(t)\hat{A}) \qquad \text{valeur moyenne,}\\
&i\hbar\frac{d}{dt}\hat{\rho}(t) = [\hat{H}(t), \hat{\rho}(t)] \qquad \text{évolution temporelle,}\\
&\hat{\rho}^\dagger(t) = \hat{\rho}(t) \qquad \text{opérateur hermitien,}\\
&\hat{\rho}^2(t) = \hat{\rho}(t) \qquad \text{opérateur de projection}
\end{aligned} \tag{10.2}$$

Considérons le cas particulier où $\hat{H}$ est indépendant du temps. Il est utile de décomposer le vecteur d'état sur la base des états propres $|u_n\rangle$ de cet hamiltonien. Les coefficients c_n de la décomposition évoluent alors dans le temps sous la forme $c_n(0)e^{-iE_nt/\hbar}$. On a donc :

$$\rho_{nn}(t) = c_n(t)c_n(t)^* = c_n(0)c_n(0)^* = \rho_{nn}(0) \tag{10.3}$$

$$\rho_{np}(t) = c_n(t)c_p(t)^* = \rho_{np}(0)e^{-i(E_n-E_p)t/\hbar} \tag{10.4}$$

Les termes diagonaux (appelés "populations") ρ_{nn} sont constants, et les termes non-diagonaux (appelés "cohérences") ρ_{np} avec $n \neq p$ oscillent dans le temps à la fréquence de Bohr de la transition entre les deux niveaux considérés.

Exemple : Spin 1/2

Le vecteur d'état est de la forme :

$$|\psi\rangle = \cos\frac{\theta}{2}e^{-i\varphi/2}|+\rangle_z + \sin\frac{\theta}{2}e^{i\varphi/2}|-\rangle_z.$$

Cet état est aussi l'état propre $|+\rangle_{\vec{u}}$ de la projection du moment cinétique sur le vecteur unitaire $\vec{u}$ de coordonnées polaires (θ, ϕ) avec la valeur propre $+\hbar/2$. L'opérateur spin s'écrit $\hat{\mathbf{S}} = \hbar\vec{\sigma}/2$, où $\vec{\sigma}$ est l'opérateur vectoriel formé des trois matrices de Pauli, et par suite $\langle\hat{\vec{S}}\rangle = \hbar\vec{u}/2$. On calcule facilement l'expression de la matrice densité qui lui est associée :

$$\hat{\rho}(\theta,\varphi) = |\psi\rangle\langle\psi| = \begin{pmatrix} \cos^2\frac{\theta}{2} & \cos\frac{\theta}{2}\sin\frac{\theta}{2}e^{-i\varphi} \\ \cos\frac{\theta}{2}\sin\frac{\theta}{2}e^{i\varphi} & \sin^2\frac{\theta}{2} \end{pmatrix}$$

2. Cas d'un système composite

Considérons le cas d'un système composite, constitué de deux parties (1) et (2) qui peuvent être distinguées par des mesures que l'on peut faire sur la partie (1) sans affecter la partie (2) (ou inversement). C'est le cas notamment de deux particules (atomes, photons, ...) issues d'une source commune, ou qui ont interagi pendant un intervalle de temps donné, et qui se séparent physiquement ensuite, de façon suffisante pour que les appareils de mesures introduits sur une partie n'interagissent pas physiquement avec l'autre partie.

2.1 Notion de trace partielle

L'espace de Hilbert de ce système est le produit tensoriel des deux espaces de Hilbert $\mathcal{E} = \mathcal{E}(1) \otimes \mathcal{E}(2)$ de chacune des parties. Soient $\{|u_n(1)\rangle\}$ une base de $\mathcal{E}(1)$ et $\{|v_p(2)\rangle\}$ une base de $\mathcal{E}(2)$. L'opérateur densité $\hat{\rho}_{12}$ décrivant un état pur du système composite est donc un opérateur agissant dans cet espace $\mathcal{E}$. On définit alors la trace partielle de l'opérateur densité par :

$$\hat{\rho}(1) = Tr_2 \hat{\rho}_{12} = \sum_p \langle v_p(2)|\hat{\rho}_{12}|v_p(2)\rangle.$$

Elle permet d'obtenir non pas un nombre, mais un opérateur agissant uniquement dans l'espace $\mathcal{E}(1)$. Elle est différente de la trace globale de l'opérateur, donnée par :

$$Tr\hat{\rho}_{12} = Tr_1(Tr_2\hat{\rho}_{12}) = Tr_2(Tr_1\hat{\rho}_{12}) = \sum_{np} \langle u_n(1), v_p(2)|\hat{\rho}_{12}|u_n(1), v_p(2)\rangle.$$

Cherchons maintenant à calculer la valeur moyenne d'un opérateur qui n'agit que sur l'espace (1) : $\hat{A}(1) = \hat{A}(1) \otimes I(2)$.

$$\begin{aligned}
& \langle \hat{A}(1)\rangle = Tr\{\hat{\rho}_{12}\hat{A}(1)\} \\
= & \sum_{n,p,n',p'} \langle u_n(1), v_p(2)|\hat{\rho}_{12}|u_{n'}(1), v_{p'}(2)\rangle \langle u_{n'}(1), v_{p'}(2)|\hat{A}(1) \otimes I(2)|u_n(1), v_p(2)\rangle \\
= & \sum_{n,n'} \Big[\sum_p \langle u_n(1), v_p(2)|\hat{\rho}_{12}|u_{n'}(1), v_p(2)\rangle \Big] \langle u_{n'}(1)|\hat{A}(1)|u_n(1)\rangle \\
= & \; Tr_1(\rho(1)\hat{A}(1)). \qquad (10.5)
\end{aligned}$$

Pour calculer la valeur moyenne de cet opérateur, on n'a donc pas besoin de connaître l'état du système total, mais uniquement la *matrice densité réduite* $\hat{\rho}(1)$, trace partielle de la matrice densité totale, et qui agit uniquement dans l'espace de Hilbert du système (1). Il est facile de voir que toutes les règles énoncées à la fin de (1.2) restent valables pour la matrice densité réduite (trace, valeur moyenne, évolution, hermiticité) sauf la dernière : on a maintenant : $\hat{\rho}(1)^2 \neq \hat{\rho}(1)$. La matrice densité réduite n'est plus un projecteur.

En conclusion, si un système quantique est "momentanément" isolé, même s'il a interagi précédemment avec un autre système et possède des corrélations avec cet autre système, *on peut calculer tous les résultats de mesure relatifs à ce système à l'aide d'un objet caractérisant uniquement ce sous-système* :

c'est la matrice densité réduite, qui n'est plus un opérateur de projection sur un état quantique déterminé. Cet objet "local" du système (1) ne peut évidemment pas nous renseigner sur les corrélations qui existent éventuellement entre les systèmes (1) et (2), pour lesquelles les renseignements supplémentaires sur le système contenus dans le vecteur d'état (ou la matrice densité) global sont indispensables.

2.2 Notion d'intrication

On dira que le système composite est dans un *état intriqué* ("entangled state") si la fonction d'onde du système $|\psi\rangle \in \mathcal{E}$ ne peut pas se mettre sous la forme d'un produit tensoriel de deux fonctions d'onde appartenant à chacun des sous espaces :

$$|\psi\rangle \neq |\psi(1)\rangle \otimes |\psi(2)\rangle \tag{10.6}$$

Si le système est dans un état produit tensoriel, une mesure sur sa partie (1) projettera l'ensemble du vecteur d'état sur l'état propre correspondant, et cette opération de "réduction du paquet d'onde" n'affectera pas la partie $|\psi(2)\rangle$ de l'état, donc les résultats des mesures effectuées sur la partie (2) : les mesures sur les parties (1) et (2) sont décorrélées. En revanche, si le système est dans un état intriqué, la réduction du paquet d'onde ayant lieu lors d'une mesure sur la partie (1) modifiera aussi les résultats de mesure effectués sur l'autre partie, même si les deux parties sont physiquement complètement indépendantes au moment de la mesure. Dans un état intriqué, on a de très fortes corrélations entre les mesures effectuées sur les parties (1) et (2).

Un état intriqué est toujours une superposition d'états séparables (décomposition de Schmidt) :

$$|\psi\rangle_{12} = \sum_{n,p} c_{n,p} |u_n(1)\rangle \otimes |v_p(2)\rangle.$$

où les différents vecteurs $|u_n(1)\rangle$ sont orthogonaux entre eux, de même que les vecteurs $|v_p(2)\rangle$.

Exemple : État singulet d'un système de deux spins 1/2 :

$$|0,0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|+,-\rangle - |-,+\rangle)$$

Les mesures de la composante selon Oz du moment cinétique de chacune des parties donnent des résultats aléatoires, mais toujours opposés pour les deux

parties : il y a *corrélation totale* entre les mesures effectuées sur les deux sous-parties, même si celles-ci sont très séparées au moment de la mesure. Comme l'état singulet est de moment cinétique total nul, il est invariant par n'importe quelle rotation autour de l'origine, et donc une telle corrélation totale existe pour des mesures de la composante du moment cinétique selon n'importe quelle direction.

La matrice densité réduite qui décrit l'une des sous-parties est facile à calculer : on trouve que c'est l'opérateur identité divisé par deux. Cette matrice densité rend bien compte du fait que les mesures de $\hat{S}_z$ donnent les résultats $\pm 1/2$ avec des probabilités égales, mais ne rend pas compte des corrélations avec l'autre sous-système.

Il est possible de quantifier le degré d'intrication d'un système composite d'une manière intrinsèque, c'est-à-dire par une mesure qui soit invariante sous l'effet de transformations unitaires internes aux espaces de Hilbert $\mathcal{E}(1)$ et $\mathcal{E}(2)$. Nous renvoyons le lecteur intéressé au cours du Collège de France de Serge Haroche (2001-2002)[17].

3. Mélange statistique

3.1 Introduction

Comme en physique classique, il existe en physique quantique de nombreuses situations où l'on n'est pas en mesure de spécifier avec certitude l'état du système préparé. On peut simplement dire qu'on a préparé l'un quelconque des états $|\psi_i\rangle$ $(i = 1, ..., P)$ avec une probabilité p_i. L'aspect statistique qui s'introduit ici est de nature classique : il est lié à l'imperfection de la préparation du système, et non pas à l'incertitude quantique fondamentale qui existe même si le système initial est parfaitement déterminé. Les résultats des mesures effectuées sur ce système vont donc refléter la double incertitude, classique et quantique, du problème.

La valeur moyenne d'une observable $\hat{A}$ mesurée dans de telles conditions sera égale à :

$$\langle \hat{A} \rangle = \sum_{i=1}^{P} p_i \langle \psi_i | \hat{A} | \psi_i \rangle = \sum_{i=1}^{P} p_i Tr(\rho_i \hat{A}) = Tr(\rho_m \hat{A}) \tag{10.7}$$

Le "mélange statistique d'états" peut donc être décrit, avec la même règle de calcul pour les valeurs moyennes que pour les cas purs, par la matrice densité

"moyenne" des différentes matrices densité possibles du système :

$$\rho_m = \sum_{i=1}^{P} p_i \rho_i. \tag{10.8}$$

3.2 Superposition d'états et mélange statistique

Il est important de bien saisir la différence entre deux objets au premier abord bien proches :

- la superposition cohérente d'états quantiques, décrite par le vecteur d'état :

$$|\Psi_{superp}\rangle = \sum_i \sqrt{p_i} e^{i\phi_i} |\psi_i\rangle \tag{10.9}$$

  ou la matrice densité :

$$\rho_{superp} = \sum_{i,j} \sqrt{p_i p_j} e^{i(\phi_i - \phi_j)} |\psi_i\rangle\langle\psi_j| \tag{10.10}$$

- et le mélange statistique, décrit par la matrice densité :

$$\rho_{stat} = \sum_{i=1}^{P} p_i \rho_i \tag{10.11}$$

  qui est la "partie diagonale" de la matrice densité précédente.

La valeur moyenne d'une observable $\hat{A}$ s'écrit dans les deux cas :

$$\langle \hat{A} \rangle_{superp} = \sum_{i,j} \sqrt{p_i p_j} e^{i(\phi_i - \phi_j)} \langle \psi_j | \hat{A} | \psi_i \rangle \qquad \langle \hat{A} \rangle_{stat} = \sum_i p_i \langle \psi_i | \hat{A} | \psi_i \rangle.$$

Ces deux objets donnent donc la même valeur moyenne à toute observable diagonale sur les états $|\psi_i\rangle$. Ils donnent en revanche des résultats très différents pour la valeur moyenne d'observables dont les éléments de matrice entre états $|\psi_i\rangle$ différents sont non nuls. La phase ϕ_i de la superposition joue alors un rôle déterminant dans la valeur moyenne de la mesure.

Les superpositions cohérentes d'états se rencontrent souvent dans les problèmes de physique microscopique, et on en a vu de nombreux exemples dans ce cours. Par contre, ces superpositions deviennent étranges, voire paradoxales, dès lors qu'on superpose des états macroscopiques : le "chat de Schrödinger", superposition d'un chat vivant et d'un chat mort, en est l'exemple

le plus célèbre. Une telle superposition ne s'observe pas dans la vie de tous les jours (même s'il semble difficile de trouver une observable présentant un élément de matrice non nul entre l'"état" chat mort et l'"état" chat vivant). Il n'y a en revanche pas de problème à considérer un mélange statistique d'objets macroscopiques différents.

Pourquoi ? La réponse à cette question a fait l'objet de nombreuses études [18], que l'on peut résumer comme suit : un système macroscopique n'est pas généralement un système fermé (c'est particulièrement vrai pour un chat). Il interagit de manière dissipative avec son environnement, et a de ce fait une évolution irréversible. Si le système est initialement dans une superposition cohérente d'états, on montre que l'interaction avec l'environnement conduit à une *décohérence* de cette superposition initiale, conduisant à un état final qui est un mélange statistique.

Le passage de la superposition cohérente au mélange statistique résulte de la trace sur les états non observés de l'environnement. Le temps caractéristique de décohérence dépend de manière critique de la taille du système. Pour des objets macroscopiques, la décohérence est presque instantanée. A la fin de ces notes, on trouvera un petit modèle de relaxation des cohérences de la matrice densité d'un système $\mathcal{S}$ couplé à un réservoir $\mathcal{R}$.

3.3 Propriétés et exemples

Pour un mélange statistique,

- ρ est hermitien : $\rho = \rho^\dagger$. Il peut donc toujours être diagonalisé et de plus ses valeurs propres sont positives ($\lambda_i \geq 0$).
- $Tr\rho_m = \sum_i p_i = 1$
- ρ_m n'est plus nécessairement un projecteur $\rho_m^2 \neq \rho_m$, et $Tr\rho_m^2 \leq 1$. En effet, $Tr(\rho_m^2) = \sum_i p_i^2 \leq \sum_i p_i = 1$. $Tr(\rho^2) = 1$ est *équivalent* à dire que le système est un cas pur.
- Evolution temporelle :

$$\rho_m = \sum_i p_i \rho_i \qquad \Longrightarrow \qquad i\hbar \frac{d\rho_m}{dt} = [H, \rho_m] \tag{10.12}$$

  On en déduit comme plus haut que les populations sont indépendantes du temps, et que les cohérences "tournent" dans le plan complexe à la fréquence de Bohr entre les deux niveaux considérés.
- $\rho_{kk} \geq 0$ quelle que soit la base. En effet, $\rho_{kk} = Tr(\rho|k\rangle\langle k|)$ est la probabilité d'être dans l'état k : $\rho_{kk} = \sum_i p_i |\langle \psi_i | k\rangle|^2 \geq 0$.

– $|\rho_{ij}|^2 \leq \rho_{ii}\rho_{jj}$ (inégalité de Schwartz). Pour la démontrer, il suffit de remarquer que $\langle\psi|\rho|\psi\rangle \geq 1$ avec $|\psi\rangle = |\psi_i\rangle + \eta|\psi_j\rangle$.

Toutes les propriétés démontrées pour un cas pur subsistent donc, à l'exception du caractère de projecteur de l'opérateur densité.

3.4 Exemples

1. Équilibre thermodynamique

Pour obtenir l'opérateur densité $\hat{\rho}$ d'un système en équilibre thermodynamique, soumis à un certain nombre de contraintes, on postule en mécanique statistique que $\hat{\rho}$ décrit un état qui ne contient pas plus d'information que celles fournies par les contraintes. Il faut donc pouvoir associer à $\hat{\rho}$ une quantité caractérisant l'*information manquante* dans l'état décrit par $\hat{\rho}$ puis déterminer $\hat{\rho}$ en maximisant cette information manquante, compte tenu des contraintes. L'entropie statistique de Von Neumann caractérise précisément cette information manquante dans l'état décrit par $\hat{\rho}$. Toute notre connaissance du système quantique considéré est donc fournie par l'opérateur matrice densité $\hat{\rho}$ (hermitien, semi-positif et de trace unité). Diagonalisons la matrice densité $\hat{\rho}$ sous la forme :

$$\hat{\rho} = \sum_m p_m |\varphi_m\rangle\langle\varphi_m| \qquad avec \qquad \langle\varphi_m|\varphi_p\rangle = \delta_{pm},$$

et $p_m \geq 0$, $\sum_m p_m = 1$. Remarquons que plusieurs p_m peuvent être égaux du fait de dégénérescence. Von Neumann introduit l'entropie statistique $S(\hat{\rho})$ associée à $\hat{\rho}$:

$$S(\hat{\rho}) = -k_B \sum_m p_m \mathrm{Log} p_m = -k_B \mathrm{Tr}(\hat{\rho}\mathrm{Log}\hat{\rho}).$$

Ainsi pour un système quantique en équilibre thermique avec un thermostat à la température T la matrice densité est :

$$\hat{\rho} = \frac{1}{Z} e^{-\hat{H}/k_B T}$$

où $Z = Tr(e^{-\hat{H}/k_B T})$ est la fonction de partition du système. Il en résulte que $\rho_{nn} = \frac{1}{Z} e^{-E_n/k_B T}$ et $\rho_{np} = 0$.

2. Mélange statistique non polarisé d'états d'un spin 1/2

Considérons un mélange statistique d'états d'un spin 1/2 états propres avec la valeur propre +1/2 de la projection du moment cinétique sur un vecteur unitaire de direction aléatoire, pointant de manière équirépartie dans toutes les directions de l'espace. Il s'agit d'un état qui ne possède pas de direction privilégiée (état non polarisé), qui va être décrit par la matrice densité :

$$\hat{\rho} = \frac{1}{4\pi}\int d\Omega \rho(\theta,\varphi) = \frac{1}{4\pi}\int_0^{2\pi} d\varphi \int_0^{\pi} d\theta \sin\theta \rho(\theta,\varphi) = \begin{pmatrix} 1/2 & 0 \\ 0 & 1/2 \end{pmatrix}$$

La moyenne angulaire a brouillé les cohérences, et l'on n'est plus dans un cas pur puisque $\hat{\rho}^2 = \hat{\rho}/2$. On vérifie que $\langle S_i \rangle = 0$ pour $i = x, y, z$.

Remarquons qu'on peut obtenir la même matrice densité, et donc aboutir aux mêmes résultats de mesure, avec d'autres mélanges statistiques, comme un mélange de 50% de spins $|+1/2\rangle$ dans la direction Oz et de 50% de spins $|-1/2\rangle$ dans la direction Oz.

Un tel mélange statistique est l'analogue pour le spin 1/2 de la lumière dépolarisée, ou naturelle, mélange d'états de polarisation linéaire de directions équiréparties dans le plan transverse à la propagation.

3. Spins 1/2 à l'équilibre thermodynamique dans un champ magnétique statique

L'hamiltonien du système s'écrit :

$$\hat{H} = -\mathbf{M}.\mathbf{B}_0 = -\gamma B_0 \hat{S}_z = \omega_0 \hat{S}_z.$$

Si le système est à l'équilibre thermodynamique, il a une probabilité $e^{-\hbar\omega_0/2k_BT}/Z$ d'être dans l'état $|+\rangle$ et $e^{\hbar\omega_0/2k_BT}/Z$ d'être dans l'état $|-\rangle$. D'où :

$$\hat{\rho} = \frac{1}{Z}\begin{pmatrix} e^{-\hbar\omega_0/2k_BT} & 0 \\ 0 & e^{\hbar\omega_0/2k_BT} \end{pmatrix}.$$

où $Z = 2ch(\hbar\omega_0/2k_BT)$. La nullité des éléments non diagonaux revient à dire que toutes les directions perpendiculaires à $\mathbf{B}_0$ (repérées par φ) sont équivalentes : $\langle S_x \rangle = \langle S_y \rangle = 0$. De plus :

$$\langle \hat{S}_z \rangle = Tr(\hat{\rho}\hat{S}_z) = -\frac{\hbar}{2}\mathrm{th}\Big(\frac{\hbar\omega_0}{2k_BT}\Big).$$

Le spin acquiert une polarisation moyenne parallèle au champ dans lequel il est plongé, d'autant plus grande que B_0 est plus grand et que T est plus petit.

4. Modèle simple de relaxation des cohérences

4.1 Établissement de l'équation pilote

Nous allons établir une équation pilote décrivant la relaxation d'un système $\mathcal{S}$ couplé à un réservoir $\mathcal{R}$. L'hamiltonien du système est la somme d'un hamiltonien du système, du réservoir, et d'un terme d'interaction :

$$H = H_S + H_R + H_{SR}$$

On choisit une forme particulière du terme d'interaction, qui permet de mener des calculs simples, et qui de plus se rencontre souvent dans les cas réels. Il s'agit d'un terme qui est le produit d'une observable S du système et d'une observable R du réservoir : $H_{SR} = S.R$. L'équation du mouvement de l'opérateur densité ρ_{SR} du système global $\mathcal{S} + \mathcal{R}$ est :

$$i\hbar \frac{d}{dt}\rho_{SR} = [H, \rho_{SR}]. \tag{10.13}$$

Nous déduirons de (10.13) l'équation d'évolution de l'opérateur densité réduit relatif au seul système $\mathcal{S}$: $\rho_S(t) = Tr_R \rho_{SR}(t)$. On peut utiliser la représentation d'interaction pour isoler le rôle du terme de couplage H_{SR} :

$$\begin{aligned}
\tilde{\rho}_{SR}(t) &= e^{i(H_S+H_R)t/\hbar}\rho_{SR}(t)e^{-i(H_S+H_R)t/\hbar} \\
\tilde{S}(t) &= e^{iH_S t/\hbar} S e^{-iH_S t/\hbar} \\
\tilde{R}(t) &= e^{iH_R t/\hbar} R e^{-iH_R t/\hbar}
\end{aligned}$$

A partir de (10.13) on déduit :

$$i\hbar \frac{d}{dt}\tilde{\rho}_{SR} = [\tilde{S}(t)\tilde{R}(t), \tilde{\rho}_{SR}]. \tag{10.14}$$

Nous faisons les trois hypothèses suivantes sur l'état initial :

(i) Il y a factorisation initiale de l'état :

$$\rho_{SR}(0) = \rho_S(0)\rho_R(0)$$

(ii) Le réservoir est initialement dans un état stationnaire :

$$[\rho_R(0), H_R] = 0$$

(iii) La valeur moyenne des observables du réservoir est nulle :

$$\langle R \rangle = Tr[R\rho_R(0)] = 0$$

La solution de (10.14) peut s'écrire sous forme intégrale :

$$\tilde{\rho}_{SR}(t) = \tilde{\rho}_{SR}(0) + \frac{1}{i\hbar}\int_0^t d\tau[\tilde{S}(t-\tau)\tilde{R}(t-\tau), \tilde{\rho}_{SR}(t-\tau)] \tag{10.15}$$

En reportant (10.15) dans (10.14), on obtient

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\tilde{\rho}_{SR}(t) &= \frac{1}{i\hbar}[\tilde{S}(t)\tilde{R}(t), \tilde{\sigma}_S(0)\tilde{\sigma}_R(0)] \\ &- \frac{1}{\hbar^2}\int_0^t d\tau[\tilde{S}(t)\tilde{R}(t), [\tilde{S}(t-\tau)\tilde{R}(t-\tau), \tilde{\rho}(t-\tau)]] \end{aligned} \tag{10.16}$$

Prenons la trace des deux membres de l'équation(10.16) sur le réservoir. Compte tenu des hypothèses sur l'état initial, le premier terme du deuxième membre de (10.16) donne une contribution nulle et on obtient :

$$\frac{d}{dt}\tilde{\rho}_S(t) = -\frac{1}{\hbar^2}\int_0^t d\tau Tr_R\Big\{[\tilde{S}(t)\tilde{R}(t), [\tilde{S}(t-\tau)\tilde{R}(t-\tau), \tilde{\rho}(t-\tau)]]\Big\}. \tag{10.17}$$

Jusqu'ici, aucune approximation n'a été faite. Pour aller plus loin, il faut en faire maintenant.

(i) Dans le deuxième membre de (10.17), on va écrire :

$$\tilde{\rho}_{SR} \simeq \tilde{\rho}_S(t-\tau)\rho_R(0). \tag{10.18}$$

On néglige ainsi les corrélations entre $\mathcal{S}$ et $\mathcal{R}$ à l'instant $t-\tau$ et on néglige la variation de l'état du grand réservoir entre 0 et $t-\tau$ sous l'effet du couplage avec le petit système (la vitesse de variation de l'équation (10.17) est en effet déjà d'ordre 2 par rapport au couplage H_{SR}). Notons cependant qu'on tient compte des corrélations entre $\mathcal{S}$ et $\mathcal{R}$ qui apparaissent entre t et $t-\tau$ et qui déterminent $d\tilde{\rho}_S(t)/dt$. En reportant (10.18) dans (10.17), et en explicitant le double commutateur, on obtient

$$\begin{aligned} \frac{d}{dt}\tilde{\rho}_S(t) = -\frac{1}{\hbar^2}\int_0^t d\tau\langle\tilde{R}(t)\tilde{R}(t-\tau)\rangle_R \\ \Big\{\tilde{S}(t)\tilde{S}(t-\tau)\tilde{\rho}_s(t-\tau) - \tilde{S}(t-\tau)\tilde{\rho}_s(t-\tau)\tilde{S}(t) + h.c.\Big\} \end{aligned} \tag{10.19}$$

où

$$\langle \tilde{R}(t)\tilde{R}(t-\tau)\rangle_R = Tr_R\Big\{\rho_R(0)\tilde{R}(t)\tilde{R}(t-\tau)\Big\}. \tag{10.20}$$

Le réservoir n'apparaît plus dans l'équation d'évolution opératorielle (10.19) de $\tilde{\rho}_S(t)$ que par l'intermédiaire des moyennes à deux temps (10.20). On suppose que le spectre des fréquences apparaissant dans l'évolution de $\tilde{R}$ est très large (ce qui est naturel puisque $\mathcal{R}$ est un réservoir). Il s'ensuit que les fonctions (10.20), qui ne dépendent que de τ (réservoir stationnaire), ont une largeur en τ très petite. Cette largeur τ_c est par définition le *temps de corrélation du réservoir*.

(ii) La présence de moyennes à deux temps (10.20) dans (10.19) limite les valeurs de τ dans l'intégrale à des valeurs de l'ordre de τ_c. Si τ_c est très court devant le temps d'évolution de $\tilde{\rho}_S$, on peut poser $\rho_S(t-\tau) \simeq \rho_S(t)$.

En repassant au point de vue de Schrödinger, et en remplaçant t par $+\infty$ car $t \gg \tau_c$, on obtient alors l'équation d'évolution de $\rho_S(t)$ suivante, appelée *équation pilote* :

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}\rho_S(t) &= \frac{1}{i\hbar}[H_S,\rho_S(t)] - \frac{1}{\hbar^2}\int_0^\infty d\tau\langle R\tilde{R}(-\tau)\rangle_R\Big\{S\tilde{S}(-\tau)\rho_S(t) - \tilde{S}(-\tau)\rho_S(t)S\Big\}\\ &- \frac{1}{\hbar^2}\int_0^\infty d\tau\langle R\tilde{R}(-\tau)\rangle_R\Big\{\rho_S(t)\tilde{S}(-\tau)S - S\rho_S(t)\tilde{S}(-\tau)\Big\}. \end{aligned}\tag{10.21}$$

On peut montrer [2] que la condition de validité des approximations précédentes est $v\tau_c \ll \hbar$ où $v^2 = Tr\{H_{SR}^2\rho_S(0)\rho_R(0)\}$. Cette condition est appelée condition de "rétrécissement par le mouvement".

4.2 Cas particulier

Supposons que l'observable S de $\mathcal{S}$ apparaissant dans le couplage H_{SR} commute avec H_S : $[S,H_S]=0$. On en déduit que

$$\tilde{S}(-\tau) = e^{-iH_S\tau/\hbar}Se^{iH_S\tau/\hbar} = S. \tag{10.22}$$

Compte tenu de l'équation (10.22), on peut alors écrire (10.21) sous la forme

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}\rho_S(t) &= \frac{1}{i\hbar}[H_S,\rho_S(t)] - \frac{(\alpha+i\beta)}{\hbar^2}\Big\{S^2\rho_S(t) - S\rho_S(t)S\Big\}\\ &- \frac{(\alpha-i\beta)}{\hbar^2}\Big\{\rho_S(t)S^2 - S\rho_S(t)S\Big\}, \end{aligned}\tag{10.23}$$

où on a supposé $t \gg \tau_c$, et où le nombre complexe $\alpha + i\beta$ est défini par :

$$\alpha + i\beta = \int_0^\infty \langle R\tilde{R}(-\tau)\rangle_R \tag{10.24}$$

Par ailleurs, comme S et H_S commutent, il est possible de trouver une base $\{|\varphi_m\rangle\}$ de vecteurs propres communs à S et H_S :

$$H_S|\varphi_m\rangle = E_m|\varphi_m\rangle \qquad \text{et} \qquad S|\varphi_m\rangle = s_m|\varphi_m\rangle.$$

Projetons alors l'équation pilote (10.23) sur la base des $\{|\varphi_m\rangle\}$. Pour les populations $\langle\varphi_m|\rho_S|\varphi_m\rangle$, on obtient

$$\frac{d}{dt}\langle\varphi_m|\rho_S|\varphi_m\rangle = 0.$$

Pour les cohérences, $\langle\varphi_m|\rho_S|\varphi_p\rangle$ avec $m \neq p$, on obtient

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}\langle\varphi_m|\rho_S|\varphi_p\rangle &= -i\Big[\frac{E_m - E_p}{\hbar} + \frac{\beta}{\hbar^2}(s_m^2 - s_p^2)\Big]\langle\varphi_m|\rho_S|\varphi_p\rangle \\ &- \frac{\alpha}{\hbar^2}(s_m - s_p)^2\langle\varphi_m|\rho_S|\varphi_p\rangle. \end{aligned} \tag{10.25}$$

On voit que dans un tel système les populations sont figées et ne sont pas relaxées par le réservoir. Chaque état stationnaire $|\varphi_m\rangle$ est déplacé d'une quantité $\beta s_m^2/\hbar$. On peut intégrer cet effet de renormalisation des énergies en ajoutant à H un terme proportionnel à S^2.

Par contre, la cohérence entre $|\varphi_m\rangle$ et $|\varphi_p\rangle$ est amortie avec un taux proportionnel au carré $(s_m - s_p)^2$ de la différence entre les valeurs propres de S.

On trouvera dans la référence [19] un lien intéressant entre phénomènes de relaxation et considérations sur l'information et la théorie de la mesure en mécanique quantique.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Ce polycopié est téléchargeable sur la base de données de ressources pour l'enseignement de l'optique HAL-SFO (Société Française d'Optique), ($http : //hal - sfo.ccsd.cnrs.fr/$) plus précisément : $http : //hal - sfo.ccsd.cnrs.fr/index.php?action_todo = search\&view_this_doc = sfo - 00355926\&version = 1\&halsid = b5278gihde3b630kpmdit6l5b4$

[2] *Introduction à l'Electrodynamique quantique* et *processus d'interactions entre photons, et atomes*, C. Cohen- Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, InterEditions.

[3] *Introduction aux lasers et à l'optique quantique*, G. Grynberg, C. Fabre, A. Aspect, Editions Ellipses

[4] *Introduction to Quantum Optics : from the Semi-Classical Approach to Quantized Light*, G. Grynberg, C. Fabre, A. Aspect, Cambridge University Press (2010).

[5] *Optical coherence and quantum optics*, L. Mandel, E. Wolf, Cambridge University Press.

[6] *Elements of quantum optics*, P. Meystre, M. Sargent, Springer-Verlag.

[7] *Exploring the Quantum*, S. Haroche, J-M Raimond, Oxford University Press

[8] *Quantum Optics*, M. Scully, D. Zubairy, Cambridge University Press.

[9] *Quantum fluctuations*, Cours des Houches, session 63, S. Reynaud, E. Giacobino, J. Zinn-Justin éditeurs, North-Holland

[10] *Fundamental systems in quantum optics*, Cours des Houches, session 53, J. Dalibard, J.M. Raymond, J. Zinn-Justin éditeurs, North-Holland

[11] *Quantum Mechanics of one- and two- electons atoms*, H. Bethe, E. Salpeter, Springer Verlag

[12] *Mécanique Quantique*, C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë, Hermann

[13] *Superradiance : An essay on the theory of collective spontaneous emission* M. Gross, S. Haroche , Physics Reports, **93** 301 (1982)

[14] *Physique Atomique, 1 : atomes et rayonnement*, B. Cagnac, L. Tchang-Brillet, J-C Pebay-Peroula, Dunod

[15] *Physique Atomique, 2 : l'atome, un édifice quantique*, B. Cagnac, L. Tchang-Brillet, J-C Pebay-Peroula, Dunod

[16] *Mécanique Quantique*, A. Messiah, Dunod

[17] S. Haroche, cours du Collège de France : *http : //www.lkb.ens.fr/recherche/qedcav/college/college.html*

[18] *The Physics of Quantum Information*, D. Bouwmeester, A. Ekert, A. Zeilinger, Springer (2000)

[19] R. Balian, *American Journal of Physics*, **57**, 1019 (1989), R. Balian, *European Journal of Physics*, **10**, 208 (1989)