

P r e m i è r e P a r t i e

Hypothèses et Formalisme Général

C H A P I T R E I I

C A L C U L D E L A M A T R I C E D E N S I T E  
D U S Y S T E M E A T O M I Q U E

A - POSITION DU PROBLEME. HYPOTHESES

1) Définition du système étudié. Position du problème

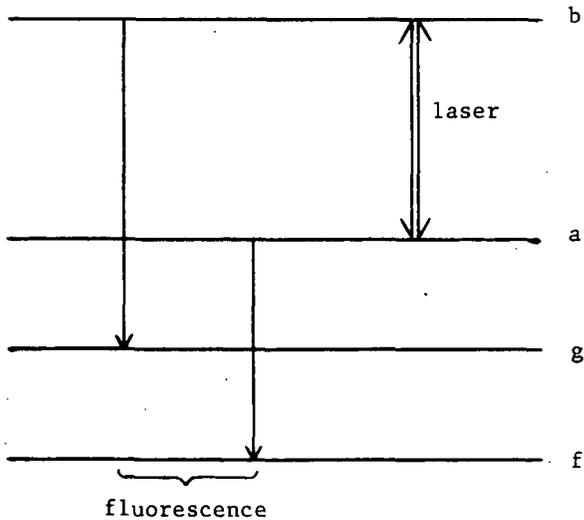


FIGURE II-1

Nous considérons un gaz d'atomes plongés dans un champ magnétique et soumis à une décharge qui peuple tous les niveaux excités.

Ce gaz est irradié par un faisceau laser résonnant pour la transition  $b \leftrightarrow a$  (b est le niveau supérieur et a le niveau inférieur). Le faisceau laser peut être une onde progressive si la cellule contenant le gaz étudié est à l'extérieur de la cavité laser, ou une onde stationnaire si la cellule est à l'intérieur. De façon générale, nous supposons le laser multimode, et nous envisageons aussi bien le cas où les modes sont indépendants que le cas où ils sont rigoureusement équidistants avec des phases relatives "bloquées" (ou "synchronisées").

Les niveaux a et b sont des niveaux excités relativement peu peuplés. Il en résulte que le gaz est toujours considéré comme optiquement mince pour la raie laser. De plus, lorsque la cellule est placée dans la cavité laser, nous négligerons la réaction de celle-ci sur l'oscillation laser, ou du moins nous la considérerons comme constante (c'est presque toujours le cas dans nos expériences). Donc nous con-

sidérons toujours que l'intensité et la phase de chaque mode sont constantes et imposées.

Le but du calcul est de déterminer l'intensité et le diagramme de polarisation de la lumière de fluorescence, émise par les niveaux atomiques a et b en interaction avec le faisceau laser, et d'en déduire des méthodes de mesure des grandeurs atomiques, en particulier les temps de relaxation

Dans nos expériences, nous n'analysons pas la forme spectrale des raies émises, et de plus nous observons les raies de fluorescence émises dans une direction perpendiculaire au faisceau laser : nous ne sommes donc pas sensibles aux phénomènes de corrélations de fréquence entre la raie laser et la lumière de fluorescence. C'est-à-dire que nous ne pouvons pas (comme CORDOVER et al. (39), qui regardent dans l'axe du laser) observer, sur le profil Doppler des raies de fluorescence, les "bosses" qui correspondent aux paquets de vitesse pompés par chaque mode (cf. § I-B-4).

Il n'est donc pas nécessaire d'introduire simultanément dans le calcul l'onde laser et la raie de fluorescence, comme l'ont fait FELD et JAVAN (40) pour expliquer les corrélations de fréquence. Nous pouvons dans un premier temps calculer la matrice densité des niveaux a et b sous l'action de l'onde laser seule : c'est ce que nous ferons de façon formelle et générale dans ce chapitre, et de façon plus détaillée dans des cas particuliers aux chapitres IV (effets linéaires), VII et VIII (effets non linéaires). Dans un deuxième temps, par des méthodes classiques, nous déduirons de la matrice densité le diagramme de polarisation de la lumière de fluorescence (chap. V).

## 2) Equations du problème

Nous nous proposons, dans ce paragraphe, de poser de façon formelle les équations donnant la matrice densité des atomes,  $\rho(\vec{v}, \vec{r}, t)$ , en fonction de leur position et de leur vitesse. En effet, en raison de leur mouvement, les atomes sont soumis à une perturbation qui dépend de leur vitesse : un atome de vitesse  $\vec{v}$  se trouvant en  $\vec{r}_0$  à l'instant  $t_0$  voit un champ apparent  $E_{ap}(t) = E [\vec{r}_0 + \vec{v}(t - t_0), t]$ . Dans le cas particulier qui nous intéresse (couplage avec l'onde laser), ce phénomène n'est autre que l'effet Doppler. De plus, la relaxation par collisions est, a priori, fonction de la vitesse des atomes.

Pour calculer les grandeurs physiques macroscopiques associées au gaz, il faudra ensuite calculer la matrice densité moyenne en chaque point en sommant sur toutes les vitesses :

$$\bar{\rho}(\vec{r}, t) = \int \rho(\vec{v}, \vec{r}, t) d^3\vec{v}$$

Plusieurs méthodes statistiques équivalentes permettent de résoudre un tel problème. Cependant, tant que l'on traite classiquement les trajectoires atomiques, toutes ces méthodes doivent résoudre l'équation de Schrödinger séparément pour chaque groupe d'atomes de vitesse donnée, en suivant le mouvement des atomes.

a) Méthode de Lamb (4)

La méthode de Lamb consiste à isoler un atome de vitesse  $\vec{v}$  qui, à l'instant  $t_0$ , au point  $\vec{r}_0$ , a été excité dans l'état quantique  $\alpha$  par le processus de pompage (ici la décharge). Ensuite, on résout l'équation de Schrödinger dans le référentiel en mouvement avec la particule et l'on en déduit la matrice densité de l'atome à l'instant  $t > t_0$  :  $\rho(\alpha, \vec{r}_0, t_0, \vec{v}, t)$ . L'équation de Schrödinger tient compte de l'évolution des variables internes sous l'effet du champ électromagnétique et de la relaxation décrite par un terme phénoménologique.

Pour calculer une grandeur physique quelconque à l'instant  $t$  au point  $\vec{r}$ , il suffit alors de sommer sur tous les atomes passant en ce point à l'instant  $t$  :

$$\bar{\rho}(\vec{r}, t) = \sum_{\alpha} \int_{-\infty}^t dt_0 \int d\vec{r}_0 \int d\vec{v} \lambda_{\alpha}(\vec{r}_0, t_0, \vec{v}) \rho(\alpha, \vec{r}_0, t_0, \vec{v}, t) \delta(\vec{r} - \vec{r}_0 - \vec{v}(t - t_0)) \quad (1)$$

$\lambda_{\alpha}(\vec{r}_0, t_0, \vec{v})$  est le nombre d'atomes excités dans l'état  $\alpha$  par unité de volume et par unité de temps au point  $(\vec{r}_0, t_0)$ .

La même méthode est utilisée par GYORFFY et al. (8) dans le cas où l'atome peut subir des collisions qui modifient sa trajectoire. Il faut alors sommer sur toutes les trajectoires aléatoires qui aboutissent en  $\vec{r}$  à l'instant  $t$ .

b) Méthode utilisée dans nos publications antérieures (24)

Dans cette seconde méthode, parfaitement équivalente à celle de LAMB, on considère globalement les atomes de vitesse  $\vec{v}$  passant en  $\vec{r}$  à l'instant  $t$ . Ils sont représentés par la matrice  $\rho(\vec{v}, \vec{r}, t)$  cherchée. Pour écrire l'équation de Schrödinger en suivant le mouvement des atomes, il suffit de remarquer qu'à l'instant  $t' = t + \tau$  les atomes considérés sont en  $\vec{r}' = \vec{r} + \vec{v}\tau$ . On peut donc écrire (en posant  $\mathcal{H} = 1$ ) :

$$\frac{d}{d\tau} \rho(\vec{v}, \vec{r} + \vec{v}\tau, t + \tau) = -i \left[ \mathcal{H}(\vec{r} + \vec{v}\tau, t + \tau), \rho(\vec{v}, \vec{r} + \vec{v}\tau, t + \tau) \right] + \Lambda(\vec{v}, \vec{r} + \vec{v}\tau, t + \tau) + \left( \frac{d}{d\tau} \rho(\vec{v}, \vec{r} + \vec{v}\tau, t + \tau) \right)_{\text{rel} + \text{tr}} \quad (2)$$

$\mathcal{H}(\vec{r}', t')$  est l'Hamiltonien représentant le système en interaction avec le champ électromagnétique.

$\left( \frac{d}{d\tau} \rho(\vec{v}, \vec{r}', t') \right)_{\text{rel} + \text{tr}}$  représente phénoménologiquement le transfert d'atomes de  $b$  vers  $a$  par émission spontanée et toutes les sortes de relaxation, c'est-à-dire la relaxation par émission spontanée et l'effet des collisions de toutes natures. Comme nous le verrons au § 5, ce terme peut éventuellement coupler les équations correspondant aux différentes vitesses. Dans ce cas, un atome donné passant en  $\vec{r}$  à l'instant  $t$  n'est pas forcément en  $\vec{r}'$  à l'instant  $t'$ . Cependant, on écrit quand même l'équation en suivant le mouvement rectiligne : les atomes dont la vitesse change sont alors éliminés du paquet de vitesse (donc de l'équation (2)) tandis que d'autres atomes viennent se joindre à ce paquet. Ainsi on tient compte des atomes changeant de vitesse dans le bilan des débits "entrant" et "sortant" de l'équation (2).

$\Lambda(\vec{v}, \vec{r}', t')$  est le terme source provenant de la décharge. Ce terme représente phénoménologiquement le débit du mécanisme d'excitation des niveaux; c'est le symétrique de  $(\frac{d}{dt} \rho)_{rel}$  qui traduit le "débit" de relaxation. C'est l'introduction de ce terme  $\Lambda$  qui fait la différence avec la méthode de LAMB : il dispense de suivre chaque atome isolément et d'intégrer ensuite sur  $t_0$  et  $\vec{r}_0$ .

Lorsque l'équation (2) est résolue, il suffit de poser  $\tau = 0$  pour obtenir  $\rho(\vec{v}, \vec{r}, t)$  dans le système d'axes du laboratoire.

c) La méthode de RAUTIAN (<sup>10</sup>)

L'équation (2) est parfaitement locale dans le temps et dans l'espace et sa solution ne nous intéresse que pour  $\tau = 0$ . La présence explicite de  $\tau$  n'est utile que pour bien préciser le sens de la dérivée du premier membre. Nous pouvons donc la considérer comme une équation de  $\vec{r}$  et de  $t$  dans le référentiel du laboratoire à condition d'écrire correctement le premier membre :

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho(\vec{v}, \vec{r}, t) + \vec{v} \cdot \vec{\nabla} \rho(\vec{v}, \vec{r}, t) = -i \left[ \mathcal{H}(\vec{r}, t), \rho(\vec{v}, \vec{r}, t) \right] + \Lambda(\vec{v}, \vec{r}, t) + \left( \frac{d}{dt} \rho(\vec{v}, \vec{r}, t) \right)_{rel} + tr \quad (3)$$

Cette équation n'est autre que l'équation de Boltzmann du gaz, modifiée pour tenir compte de l'état quantique interne des atomes. Ce point de vue représente une troisième façon d'aborder le problème statistique. C'est la méthode systématiquement employée par RAUTIAN (<sup>10</sup>) et tous les auteurs Soviétiques.

Dans les paragraphes suivants, nous allons préciser tous les termes des équations (2) et (3) et poser un certain nombre d'hypothèses simplificatrices.

3) La matrice densité des niveaux étudiés

Nous restreignons l'espace des états des atomes étudiés au seul sous-espace des deux niveaux a et b en interaction avec le laser. Les niveaux ayant respectivement les moments cinétiques  $J_a$  et  $J_b$ , cet espace a la dimension  $d = (2J_a + 1) + (2J_b + 1)$ .

L'opérateur densité  $\rho$  sera donc représenté dans la base standard  $| JM \rangle$  par une matrice  $d \times d$  dont nous écrirons les éléments :

$$\rho_{M_\alpha M_\beta} = \langle J_\alpha M_\alpha | \rho | J_\beta M_\beta \rangle \quad (\text{avec } \alpha \text{ et } \beta = a \text{ ou } b) \quad (4)$$

Nous distinguerons quatre sous-matrices :

$$\rho = \begin{pmatrix} aa\rho & ab\rho \\ ba\rho & bb\rho \end{pmatrix} \quad (5)$$

les sous-matrices  $ab\rho$  et  $ba\rho$  sont formées uniquement d'éléments non diagonaux entre le niveau a et le niveau b, que nous appelons, à la suite de COHEN-TANNOUJJI (<sup>3</sup>), "cohérences optiques".  $aa\rho$  et  $bb\rho$  contiennent des termes diagonaux ou "populations" et des termes non diagonaux ou "cohérences Zeeman".

Pour des raisons de symétrie, nous utiliserons, le plus souvent, la représentation de l'opé-

rateur densité sur une base d'opérateurs tensoriels irréductibles normalisés. Ce formalisme développé par FANO (14) a été appliqué au domaine du pompage optique par OMONT (15) et DYAKONOV et PEREL' (12a). Nous rappelons ici les notations et quelques formules. D'autres formules importantes sont données dans l'appendice A (voir aussi MESSIAH (43), appendice C, p. 924).

$$\alpha\beta\rho(\vec{v}, \vec{r}, t) = \sum_{kq} \alpha\beta\rho_q^k(\vec{v}, \vec{r}, t) \alpha\beta T_q^k \quad (\alpha \text{ et } \beta \text{ représentent } a \text{ ou } b) \quad (6)$$

avec

$$\alpha\beta\rho_q^k = \text{Tr} (\rho \cdot \alpha\beta T_q^{k\dagger}) \quad (7)$$

Pour simplifier, nous écrirons  $\alpha\rho$  et  $\alpha T_q^k$  au lieu de  $\alpha\alpha\rho$  et  $\alpha\alpha T_q^k$ .

Les opérateurs tensoriels forment une base orthonormée des opérateurs, avec la définition de normalisation :

$$\text{Tr} (\alpha\beta T_q^k \alpha'\beta' T_q^{k'\dagger}) = \delta_{\alpha\alpha'} \delta_{\beta\beta'} \delta_{kk'} \delta_{qq'} \quad (8)$$

On impose en plus que l'élément de matrice réduit de  $\alpha\beta T_q^k$  soit réel positif. On trouve alors :

$$\langle J_\alpha \parallel \alpha'\beta' T_q^k \parallel J_\beta \rangle = \delta_{\alpha\alpha'} \delta_{\beta\beta'} \sqrt{2k+1} \quad (9)$$

La signification physique de ce formalisme est maintenant bien connue : la composante  $\alpha\rho_0^0$  de l'opérateur densité sur l'opérateur scalaire représente la "population" du niveau  $\alpha$ . En effet, le nombre d'atomes dans le niveau  $\alpha$  est :

$$n_\alpha = \text{Tr} (\alpha\rho) = \sqrt{2J_\alpha+1} \alpha\rho_0^0 \quad (9-a)$$

Les trois composantes  $\alpha\rho_q^1$  caractérisent "l'orientation" du niveau  $\alpha$ ; elles sont proportionnelles aux trois composantes du moment dipolaire magnétique macroscopique provenant de tous les atomes dans le niveau  $\alpha$  :

$$\alpha\mathcal{M}_q = g_\alpha \beta \text{Tr} (J_q \alpha\rho) = g_\alpha \beta \sqrt{\frac{J_\alpha(J_\alpha+1)(2J_\alpha+1)}{3}} \alpha\rho_q^{1*} \quad (9-b)$$

où  $g_\alpha$  est le facteur de Landé et  $\beta$  le magnéton de Bohr.

Enfin, les cinq composantes  $\alpha\rho_q^2$  caractérisent "l'alignement" du niveau  $\alpha$ . Elles représentent le moment quadrupolaire électrique macroscopique.

On appelle grandeurs longitudinales les opérateurs de composante  $q = 0$  et grandeurs transversales les opérateurs de composante  $q \neq 0$ .

Parmi les termes de cohérence optique,  $\alpha\beta\rho_q^1$  est une combinaison des composantes du dipôle électrique optique entre les niveaux  $a$  et  $b$ .

4) La matrice d'excitation  $\Lambda(\vec{v}, \vec{r}, t)$ 

Ce débit d'excitation représente globalement l'effet de la décharge sur les niveaux a et b. Il contient aussi bien l'effet direct des électrons que les effets indirects d'excitation par cascade radiative ou par collisions avec des atomes métastables. Nous ferons les hypothèses suivantes :

- La variation de  $\Lambda$  est négligeable sur des distances de l'ordre du libre parcours moyen des atomes et pendant des intervalles de temps de l'ordre des constantes de temps d'évolution du système atomique (temps nécessaire pour que le système atteigne un régime stationnaire). Nous pouvons donc omettre la dépendance de  $\Lambda$  en  $\vec{r}$  et  $t$  pendant tout le calcul et si cela est nécessaire, nous la réintroduirons à la fin.

- La distribution des vitesses est supposée isotrope (note) et de forme Maxwellienne. Cette hypothèse est certainement bonne pour l'excitation directe par les électrons, car ceux-ci, du fait de leur faible masse modifient peu la vitesse atomique. Par contre, l'excitation par collisions quasi-résonnantes avec des métastables (du type  $\text{He}(3S_0) + \text{Ne} \rightarrow \text{He} + \text{Ne}(3s_2)$ ) peut produire une distribution non Maxwellienne : en effet la différence d'énergie d'excitation des deux atomes doit être compensée par une modification d'énergie cinétique.

Le plus souvent, nous prendrons  $\Lambda$  comme un opérateur scalaire, cependant il n'est pas nécessaire de restreindre la généralité à cet endroit du calcul. Nous pouvons ainsi tenir compte d'une éventuelle anisotropie de la décharge. Nous discuterons ce problème au chapitre IX.

Nous poserons donc (ici  $v$  est la projection de  $\vec{v}$  sur l'axe du faisceau laser) :

$$\Lambda(v) = W_M(v) \sum_{kq} \left[ a \lambda_q^k a T_q^k + b \lambda_q^k b T_q^k \right] \quad (10)$$

avec :

$$W_M(v) = \frac{1}{u \sqrt{\pi}} e^{-\frac{v^2}{u^2}} \quad \text{et} \quad u = \sqrt{\frac{2RT}{M}} \quad (11)$$

Avec cette définition,  $W_M(v)$  est normalisé et  $\sqrt{(2J_\alpha + 1)} \lambda_\alpha^0$  est le nombre d'atomes portés par la décharge dans le niveau  $\alpha$ , par unité de temps.

En raison de la symétrie de révolution autour de l'axe de la cellule, on peut dire que seuls les termes  $q = 0$  et  $k$  pair existent (axe de quantification suivant l'axe de symétrie).

(note)

Cette hypothèse est sûrement inapplicable pour les ions dans les décharges intenses du type de celles des lasers ioniques. En effet, dans ce cas, les ions sont fortement accélérés par le champ électrique et l'on observe par effet Doppler un fort décalage de la répartition de vitesse.

Lorsque le champ magnétique n'est pas parallèle à l'axe de la cellule, des grandeurs transversales peuvent exister dans chaque niveau; elles précèdent dans le champ magnétique et produisent un phénomène analogue à l'effet Hanle. Comme nous avons inclus dans  $\Lambda$  tous les effets de cascade, il en résulte que  $\lambda_{\alpha}^k$  peut dépendre du champ magnétique : si la cascade est multiple, la dépendance est complexe. Le plus souvent, l'anisotropie de la décharge est faible et le transfert d'anisotropie aussi; nous négligerons donc ce phénomène dans le cas général. Nous n'en parlerons que pour le transfert du niveau b au niveau a.

5) Le terme de relaxation et de transfert  $\left(\frac{d\rho}{dt}\right)_{rel + tr}$

Ce terme est la somme d'un terme de collision et d'un terme d'émission spontanée (ce dernier terme contient aussi la diffusion multiple et le transfert par émission spontanée)

$$\left(\frac{d\rho}{dt}\right)_{rel + tr} = \left(\frac{d\rho}{dt}\right)_{e.s.} + \left(\frac{d\rho}{dt}\right)_{coll} \quad (12)$$

a) Le terme de collision

Il introduit de grandes difficultés car d'une part il couple tous les sous-niveaux Zeeman et d'autre part il couple les équations correspondant à des classes de vitesses atomiques différentes. En effet, lorsqu'un atome subit une collision, son état interne et sa vitesse sont simultanément altérés. Seules des propriétés de symétrie peuvent apporter des simplifications.

Dans le cas où les vitesses des atomes excités et des atomes perturbateurs sont réparties de façon isotrope, la relaxation doit être invariante par rotation. On montre alors (OMONT (15)) que l'évolution de la matrice densité totale, c'est-à-dire sommée sur toutes les vitesses possibles, est décrite par (note) :

$$\left(\frac{d}{dt} \rho_{\alpha\beta}^k(\vec{r}, t)\right)_{coll} = -\Gamma_{\alpha\beta}(k) \rho_{\alpha\beta}^k(\vec{r}, t) \quad (\alpha, \beta = a \text{ ou } b) \quad (13)$$

c'est-à-dire qu'il y a une seule constante de temps pour chaque ordre tensoriel.

Dans le cas qui nous intéresse, cette symétrie est loin d'être réalisée car :

- α) Les atomes pompés optiquement doivent avoir une répartition de vitesses isotrope. Ce n'est pas le cas du pompage laser : du fait de la monochromaticité des modes (et de l'absence de thermalisation des vitesses des atomes excités), ce pompage n'est pas homogène sur toutes les vitesses.

(note)

Nous supposons la variation en r suffisamment lente pour que le gradient de densité ne détruise pas l'isotropie des vitesses. Nous supposons de plus qu'il n'y a pas de transfert de grandeurs tensorielles d'un niveau à l'autre par collision.

β) La propriété (13) s'applique à l'ensemble des atomes (après intégration sur les vitesses). Or dans le cas général, on ne peut écrire une seule équation représentant globalement l'évolution de  $\bar{\rho}$  : les équations (2) ou (3) isolent chaque classe de vitesse. C'est une conséquence de la cohérence (note) de la lumière laser qui nous oblige à considérer l'hamiltonien d'interaction comme une fonction de  $\vec{r}$  et de  $t$  agissant sur l'atome pendant toute sa durée de vie et tout le long de sa trajectoire.

Avec les sources conventionnelles, au contraire, le temps d'interaction atome rayonnement est très court ( $\Delta \gg$  largeur naturelle de la raie) et l'on peut traiter le cycle de pompage par des probabilités de transition indépendante de  $\vec{r}$  et  $t$  (si le pompage est assez uniforme). Si la condition  $\alpha$  est réalisée, c'est-à-dire si le spectre de la lumière pompante est assez large ( $\Delta \gg$  largeur Doppler  $\rightarrow$  probabilité de transition indépendante de  $v$ ) ou si les vitesses sont rapidement thermalisées sans destruction de l'état interne des atomes (cas de l'état fondamental - temps de relaxation et temps de pompage longs), l'équation d'évolution peut être intégrée sur les vitesses avant d'être résolue car  $\rho(v,t) = w_M(v) \bar{\rho}(t)$ . On obtient alors une équation globale donnant  $\bar{\rho}(t)$  (COHEN-TANNOUJJI (3), p. 32 : III-C-5 et III-D-1) et dans laquelle le terme de collision peut prendre la forme (13). On voit que dans le cas "classique" la condition  $\alpha$  et la condition  $\beta$  ne sont pas distinctes.

Au contraire, lorsque le laser source émet beaucoup de modes couvrant tout le profil Doppler et assez proches les uns des autres (écart entre modes  $\lesssim$  largeur naturelle de la raie), la condition  $\alpha$  est à peu près remplie, mais la condition  $\beta$  interdit l'emploi de la relation (13). Son utilisation peut cependant être justifiée approximativement pour certaines grandeurs moyennes ne mettant pas directement en jeu l'aspect cohérent de la lumière. Plus précisément, la condition  $\alpha$  suffit seule chaque fois que l'on peut (comme dans le cas "classique") intégrer l'équation d'évolution sur les vitesses de façon à obtenir une équation globale donnant  $\bar{\rho}(r,t)$ . Nous verrons certaines conditions où cela est possible pour la matrice densité  ${}_a\bar{\rho}$  de chaque niveau (§ II-B-5-c; ch. III) mais ce n'est sûrement pas réalisable pour les "cohérences optiques".

En fait, le pompage optique laser impose à la relaxation une symétrie axiale autour de la direction de propagation du faisceau laser (note de la page suivante). En effet, les équations (2) et (3) ne dépendent en fait (cf. § II-A-6) que des projections  $r$  et  $v$  de  $\vec{r}$  et  $\vec{v}$  sur cette direction : on peut donc, sans difficulté, sommer les équations sur les composantes de la vitesse perpendiculaire à cet axe, tout en conservant  $v$  fixé. Dans ces conditions, on montre (LOMBARDI (41)) que la

---

(note)  
 Dans le cas d'un phénomène stationnaire, cohérence et monochromaticité sont liées. Cependant, dans  $\alpha$ ) monochromaticité signifie simplement  $\Delta \ll$  largeur Doppler (excitation non uniforme en  $v$ ) tandis que dans  $\beta$ ) cohérence signifie  $\Delta \ll$  largeur naturelle, c'est-à-dire temps de cohérence  $\gg$  temps de relaxation.

la relation (13) doit être remplacée par une relation qui conserve q mais couple les différentes valeurs de k (axe de quantification suivant l'axe de symétrie). Si l'on inclut les collisions changeant la vitesse, on peut montrer que :

$$\left( \frac{d}{dt} \alpha_{\beta} \rho_{q}^{k}(v, r, t) \right)_{col} = \sum_{k'} \left[ -\alpha_{\beta} B_{q}^{kk'}(v) \alpha_{\beta} \rho_{q}^{k'}(v, r, t) + \int_{\alpha\beta} A_{q}^{kk'}(v, v') \alpha_{\beta} \rho_{q}^{k'}(v', r, t) dv' \right] \quad (14)$$

•  $\sum_{k'} B_{q}^{kk'}(v) \rho_{q}^{k'}(v, r, t)$  représente l'effet des collisions sur les atomes ayant la vitesse  $v$  juste avant l'instant  $t$  : il décrit d'une part le départ d'atomes quittant la vitesse  $v$  pour une vitesse  $v'$  quelconque, et d'autre part les changements d'état interne sans changement de vitesse. Bien que ce second processus ne soit pas dans le cas général un simple processus de destruction (l'anisotropie de relaxation peut, par exemple, créer de l'orientation à partir de l'alignement), nous appellerons  $\sum_{k'} B_{q}^{kk'} \rho_{q}^{k'}$  le terme de "départ". Cet abus de langage se justifie bien pour l'approximation isotrope que nous ferons dans la suite.

•  $\sum_{k'} \int A_{q}^{kk'}(v, v') \rho_{q}^{k'}(v') dv'$  est le terme "d'arrivée". En effet, il représente les atomes qui viennent se joindre au paquet de vitesse  $v$ , alors qu'ils avaient n'importe quelle vitesse  $v'$  avant de subir une collision.  $A_{q}^{kk'}(v, v')$  est la probabilité par unité de temps pour qu'un atome passe de la classe de vitesse  $v'$  à la classe  $v$ , ce passage étant accompagné d'une modification interne transformant la grandeur  $T_{q}^{k'}$  en la grandeur  $T_{q}^k$ .

$B_{q}^{kk'}(v)$  et  $A_{q}^{kk'}(v, v')$  dépendent de la forme du potentiel interatomique lors de la collision, ainsi que du rapport des masses des atomes en collision. Dans le cas général, seule une solution numérique sur ordinateur est envisageable. Cependant, pour pouvoir résoudre l'équation (2) formellement, nous allons faire les approximations suivantes :

**h.1** Pour chaque classe de vitesse, nous admettrons que la symétrie de la relaxation est assez proche de la symétrie sphérique pour qu'il n'y ait pas de couplage entre ordres tensoriels différents et que les constantes de relaxation ne dépendent pas de la composante  $q$  considérée :

$$B_{q}^{kk'}(v) = \delta_{kk'} B^k(v) \qquad A_{q}^{kk'}(v, v') = \delta_{kk'} A^k(v, v')$$

(note de la page 20)

On peut également imaginer une anisotropie de la relaxation due aux collisions avec les électrons, si la vitesse de ceux-ci n'est pas répartie de façon isotrope. Dans ce cas, la symétrie est également axiale suivant l'axe de la décharge qui est le même que celui du laser.

Cette hypothèse n'est sans doute pas trop loin de la réalité, car les grandeurs A et B résultent déjà d'une moyenne sur toutes les orientations possibles de la vitesse des atomes perturbateurs, sur le paramètre d'impact et sur deux des trois composantes de la vitesse des atomes étudiés. Seule la projection de la vitesse de ces derniers sur l'axe du laser doit être gardée constante. L'hypothèse h.1 est d'autant mieux vérifiée que les particules perturbatrices sont plus légères (donc rapides), car la vitesse relative, qui seule compte, est alors très voisine de la vitesse de ces particules; elle est donc pratiquement isotrope. C'est en particulier le cas des collisions électroniques si l'on suppose les vitesses des électrons isotropes.

**h.2** Le terme de "départ" est indépendant de la vitesse; nous poserons alors ( $\Gamma'$  et  $\Delta$  sont réels) :

$$g_{\alpha\beta} B^k(v) = G_{\alpha\beta}(k) = \left( \Gamma'_{\alpha\beta}(k) \right)_{\text{coll}} + i\Delta_{\alpha\beta}(k)$$

**h.3** Si une collision change la vitesse d'un atome, on suppose que celui-ci perd toute mémoire de sa vitesse initiale. Après la collision, la vitesse de l'atome est aléatoire avec une répartition de Maxwell,  $W_M(v)$ , identique à celle du terme d'excitation  $\Lambda(v)$  (cf. § 4). On suppose de plus que la probabilité pour que la grandeur tensorielle d'ordre k soit conservée ne dépend pas de la vitesse initiale de l'atome. On peut alors écrire :

$$g_{\alpha\beta} A^k(v, v') = g_{\alpha\beta}(k) W_M(v) = \left[ \left( \Gamma'_{\alpha\beta}(k) \right)_{\text{coll}} + i\Delta'_{\alpha\beta}(k) \right] W_M(v)$$

#### Discussion de h.2 et de h.3

• Les hypothèses h.2 et h.3 sont habituellement regroupées sous le nom d'hypothèse des collisions fortes <sup>(9)(10)</sup> (du point de vue des variables externes et non des variables internes). Lorsque les collisions sont élastiques, c'est-à-dire lorsqu'elles changent la vitesse sans affecter l'état interne, h.3 entraîne h.2. En effet (nous limitons ici la discussion à l'un des niveaux)  $A(v', v)$ , qui est alors indépendant de k, est la probabilité par unité de temps pour qu'un atome de vitesse initiale v acquière la vitesse finale v'. Le terme de "départ" exprime la probabilité pour que l'atome quitte la vitesse v pour n'importe quelle vitesse v'. Il s'écrit  $g_{\alpha\beta} B(v) = \int_{\alpha} A(v', v) dv'$ . La condition h.3 entraîne donc  $g_{\alpha\beta} B(v) = g_{\alpha\beta} = G_{\alpha\beta}$  puisque  $W_M(v)$  est une fonction normalisée (attention à la permutation de v et v' dans le noyau  $A(v, v')$ )

• En ce qui concerne la perte de mémoire de la vitesse initiale, l'hypothèse h.3 (qui entraîne h.2 dans le cas de collisions élastiques) est valable dans le cas d'atomes légers perturbés par des atomes lourds. En effet, dans ce cas la vitesse des atomes légers change beaucoup à chaque collision. On voit que ce modèle est assez grossier dans le cas expérimental des collisions  $\text{Ne}^* - \text{He}$ .

Pour les collisions électroniques, h.3 n'est évidemment pas valable mais, comme on peut négliger complètement le changement de vitesse des atomes, ce cas se traite aisément en omettant le terme d'arrivée de (14).

• Lorsque les collisions ne sont pas élastiques, l'hypothèse h.2 implique en plus que la probabilité de destruction de la grandeur tensorielle d'ordre  $k$  ne dépende pas de  $v$ . Ceci est réalisé pour certains types d'interaction (potentiel en  $r^{-3}$  d'après FAROUX (<sup>44</sup>)), ou si la moyenne sur la vitesse des perturbateurs et sur les deux composantes perpendiculaires à l'axe du laser, de la vitesse des atomes perturbés, est suffisante pour atténuer la dépendance de  ${}_{\alpha\beta}B^k$  par rapport à  $v$ . Cette dernière condition est la même que celle nécessaire à la réalisation de h.1 : elle est mieux vérifiée quand les perturbateurs sont légers, ce qui est contradictoire avec h.3

• L'hypothèse h.3 n'implique pas que toutes les collisions changent la vitesse : il peut exister des collisions à longue portée affectant seulement l'état interne. Ces collisions participent au terme de départ ( $G(k)$ ) et non au terme d'arrivée ( $g(k)$ ). En particulier, le modèle utilisé peut être bon dans le cas où les sections efficaces de désorientation sont grandes devant les sections efficaces cinétiques, elles-mêmes grandes devant les sections efficaces de quenching. Dans ce cas, parmi les  $g_{\alpha}(k)$ , seuls  $g_a(0)$  et  $g_b(0)$  sont différents de zéro et voisins de  $G_a(0)$  et  $G_b(0)$ . Une collision détruit à coup sûr l'orientation même si l'atome n'est pas dévié; par contre la population totale est conservée même si la vitesse de l'atome change.

• En fin de compte, l'hypothèse des collisions fortes (en ce qui concerne les collisions de vitesse) semble assez rudimentaire. Cependant, nous utilisons ce modèle, comme beaucoup d'auteurs (<sup>8</sup>) (<sup>10</sup>), car c'est le seul qui permet de tenir compte des changements de vitesse -ne serait-ce que qualitativement- sans trop alourdir les calculs. D'autres modèles peuvent être utilisés qui tiennent mieux compte de la diffusion de la vitesse (mouvement Brownien (<sup>10</sup>), noyau  $A^k(v,v')$  Lorentzien en  $v-v'$  (<sup>16</sup>)(<sup>17</sup>)).

• Remarquons enfin que si l'on veut construire un modèle de collisions "sans mémoire", c'est-à-dire pour lequel  $A(v,v')$  ne dépend pas de la vitesse initiale  $v'$ , cette fonction est nécessairement proportionnelle à  $W_M(v)$ , car c'est la seule façon d'assurer la conservation de la distribution de Maxwell. Cette dernière condition, indispensable pour qu'un modèle de collision soit statistiquement correct, est aussi assurée par le modèle du mouvement Brownien (<sup>9</sup>)(<sup>10</sup>). Par contre, le noyau de diffusion Lorentzien utilisé par HÄNSCH et TOSCHEK (<sup>16</sup>)(<sup>17</sup>) ne satisfait pas cette condition : ce modèle qui donne une idée plus satisfaisante que le nôtre de la diffusion des vitesses n'est valable que dans la mesure où les collisions de vitesse sont peu importantes comparativement à la relaxation des variables atomiques internes (c'est vraisemblablement le cas dans la pratique, pour le mélange He-Ne).

L'expression des termes de collisions, obtenue à l'aide des hypothèses h.1, h.2 et h.3

s'écrit :

$$\left(\frac{d}{dt} \rho_{\alpha q}^k(v, r, t)\right)_{\text{coll.}} = -(\Gamma'_{\alpha}(k))_{\text{coll.}} \rho_{\alpha q}^k(v, r, t) + (\gamma'_{\alpha}(k))_{\text{coll.}} W_M(v) \int \rho_{\alpha q}^k(v', r, t) dv' \quad (15-a)$$

$$\left(\frac{d}{dt} \rho_{ab q}^k(v, r, t)\right)_{\text{coll.}} = -G_{ab}(k) \rho_{ab q}^k(v, r, t) + g_{ab}(k) W_M(v) \int \rho_{ab q}^k(v', r, t) dv' \quad (15-b)$$

Dans l'équation (15-a), on a tenu compte du fait que l'hypothèse de la relaxation à symétrie sphérique donne des coefficients de relaxation réels pour les grandeurs atomiques. Par contre, les termes de relaxation des cohérences optiques (15-b) sont en général complexes, ce qui produit des déplacements des raies optiques. On a :

$$G_{ab}(k) = G_{ba}^*(k) = (\Gamma'_{ab}(k))_{\text{coll.}} - i\Delta(k) \quad g_{ab}(k) = g_{ba}^*(k) = (\gamma'_{ab}(k))_{\text{coll.}} - i\Delta'(k) \quad (16)$$

La partie imaginaire de  $g_{ab}$  permet de tenir compte de la corrélation, à l'occasion de chaque collision, entre le déphasage des grandeurs optiques et le changement de vitesse de l'atome. Contrairement à GYORFFY (8) qui l'a négligée, RAUTIAN (9)(10) a montré que cette corrélation a un effet important sur les formes de raies optiques et sur le "Lamb dip" (cf. ch. VIII, § C). C'est pourquoi nous conserverons  $g_{ab}(k)$  dans nos calculs, bien qu'il soit difficile d'admettre intuitivement que des collisions changeant la vitesse puissent conserver le dipôle optique (cette conservation, bien connue dans le domaine des hyperfréquences -effet DICKE (55)- est moins évidente dans le domaine optique).

Les  $\Gamma'$ , les  $\gamma'$  et les  $\Delta$  sont proportionnels à la pression des atomes perturbateurs. Lorsque le gaz est un mélange, on ajoute l'effet de chacun des constituants selon sa pression partielle.

b) Le terme d'émission spontanée

Il contient :

- La probabilité de départ par émission spontanée :

$$\gamma_{\alpha} = \frac{1}{\tau_{\alpha}} = \sum_i \gamma_{\alpha i} \quad (17-a)$$

$$(\Gamma_{ab})_{\text{e.s.}} = (\Gamma_{ba})_{\text{e.s.}} = \frac{\gamma_a + \gamma_b}{2} \quad (17-b)$$

où  $\tau_{\alpha}$  est la durée de vie radiative du niveau  $\alpha$  et  $\gamma_{\alpha i}$  la probabilité de transition du niveau  $\alpha$  vers un niveau inférieur  $i$ .

• L'arrivée d'atomes dans le niveau inférieur a, en provenance du niveau supérieur b : c'est le terme de transfert. En raison de l'isotropie du processus d'émission spontanée, ce terme s'écrit (DUCLOY (28)(31)) :

$$\left( \frac{d\rho_q^k}{dt} \right)_{tr} = \Theta(b,a,k) \rho_q^k \quad \text{avec :} \quad (18)$$

$$\Theta(b,a,k) = (-1)^{J_a+J_b+k+1} \gamma_{ba} (2J_b+1) \begin{Bmatrix} k & J_b & J_b \\ 1 & J_a & J_a \end{Bmatrix} \quad (19)$$

où  $\gamma_{ba}$  est la probabilité de transition de la raie  $b \rightarrow a$ .

Remarquons que le terme de transfert (18) ne concerne que la modification de  $\rho_a$  et  $\rho_b$  sous l'effet du laser. En l'absence d'irradiation laser, le transfert de b vers a (ainsi que tous les effets de cascade provenant d'autres niveaux) est déjà inclus dans la matrice d'excitation  $\Lambda$ . En effet, en ce qui concerne la population et les grandeurs longitudinales, on ne peut distinguer l'excitation par cascade des autres causes d'excitation. La distinction n'est possible que pour les grandeurs transversales (par l'effet Hanle) mais leur ordre de grandeur est généralement négligeable.

• La probabilité de restitution de certaines grandeurs par réabsorption de la lumière de fluorescence, c'est-à-dire par diffusion multiple de certaines raies. Lorsque la probabilité de réabsorption des photons est indépendante de la direction dans laquelle ils sont émis (probabilité de réabsorption isotrope) et lorsque les niveaux inférieurs  $i$  ne sont pas orientés, on montre (12)(13) qu'il faut remplacer (17-a) par :

$$\gamma_\beta(k) = \sum_i \gamma_{\beta i} (1 - \alpha_\beta(k,i) x_i) \quad (20)$$

$x_i$  est la probabilité moyenne pour qu'un photon de la raie  $\beta \rightarrow i$  soit réabsorbé. C'est une fonction croissante de la pression partielle d'atomes dans l'état  $i$  (OMONT (12)). Partant de zéro à pression nulle,  $x_i$  tend asymptotiquement vers 1 quand l'épaisseur optique du gaz devient grande.

$\alpha_\beta(k,i)$  est un coefficient dont la valeur est tabulée (13) en fonction de l'ordre tensoriel  $k$  et des valeurs de  $J_\beta$  et  $J_i$ .

La formule (20) est soumise aux mêmes conditions que la formule (13) :

- a) les vitesses des atomes doivent avoir une répartition isotrope
- b) la formule n'est valable que pour la matrice densité totale intégrée sur toutes les vitesses.

De plus, il faut que les photons aient la même probabilité d'être réabsorbés dans toutes les directions. Ceci n'est sûrement pas toujours le cas dans les cellules tubulaires que nous utilisons (cf. chapitre IX et réf. (42)).

En toute rigueur, il faut tenir compte de la symétrie axiale provenant tant de l'excitation laser que de la géométrie de la cellule. En négligeant le temps de propagation du photon, et après intégration sur la projection de  $\vec{r}$  et  $\vec{v}$  perpendiculairement à l'axe, on peut écrire, par analogie avec le résultat obtenu pour les collisions :

$$\left( \frac{d}{dt} \rho_q^k(v, r, t) \right)_{e.s.} = -\gamma_\beta \rho_q^k(v, r, t) + \sum_{k'} \int \beta z_q^{\alpha k k'}(v, r, v', r') \rho_q^{k'}(v', r', t) dv' dr' \quad (21)$$

Cette équation couple non seulement des vitesses différentes, mais aussi des positions différentes. Si le pompage optique et la matrice d'excitation sont assez uniformes spatialement, on montrera que  $\rho_q^k(v, r, t)$  est pratiquement constant sur toute la cellule (du fait même de la diffusion multiple, il y a sûrement une variation de  $\rho(v, \vec{r}, t)$  dans un plan perpendiculaire à l'axe (75), mais il faut se souvenir que  $\rho(v, r, t)$  est déjà moyenné dans ce plan). Ceci est rigoureux si l'onde laser est progressive; si l'onde laser est stationnaire, nous verrons au chapitre IV (§ A-2) qu'il apparaît une modulation spatiale des grandeurs atomiques mais qu'elle est le plus souvent négligeable. On peut donc, dans la majorité des cas, considérer que  $\rho$  ne dépend pas de  $r$ , et intégrer le dernier terme de (21) sur  $r'$  : on obtient alors une équation locale analogue à (14).

#### Approximations

De même que pour l'expression (13) des collisions, on pourra justifier l'approximation (20) pour la diffusion multiple dans le cas d'une excitation par un laser comportant beaucoup de modes rapprochés (excitation uniforme quelle que soit la vitesse : condition  $\alpha$  de validité de (13) et de (20)). Comme pour les collisions, cette approximation ne permettra une description correcte que de certaines grandeurs atomiques pour lesquelles on peut écrire une équation globale donnant  $\bar{\rho}$  (moyenne sur les vitesses avant la résolution des équations).

Cependant, nous ferons ici des approximations moins restrictives analogues à celles faites sur les collisions :

- Nous supposons la symétrie assez proche de la symétrie sphérique pour que le terme "d'arrivée" de (21) ne dépende pas de  $q$  et ne couple pas des ordres tensoriels différents. Ceci implique que nous négligeons d'une part l'anisotropie due à la répartition non uniforme des vitesses, et d'autre part l'anisotropie due à la forme tubulaire de la décharge. Au chapitre IX, nous montrerons comment tenir compte approximativement de cette dernière anisotropie.

- Nous tenons compte du couplage entre paquets de vitesse par un terme "sans mémoire", c'est-à-dire que nous admettons d'une part que la probabilité de réabsorption du photon ne dépend pas de la vitesse de l'atome émetteur et que, d'autre part, l'atome récepteur a une vitesse aléatoirement répartie suivant la distribution de Maxwell  $W_M(v)$ . Ces deux approximations sont très grossières pour les photons émis dans l'axe du faisceau laser, suivant lequel la projection de  $\vec{v}$  est fixe, mais en moyenne (sur toutes

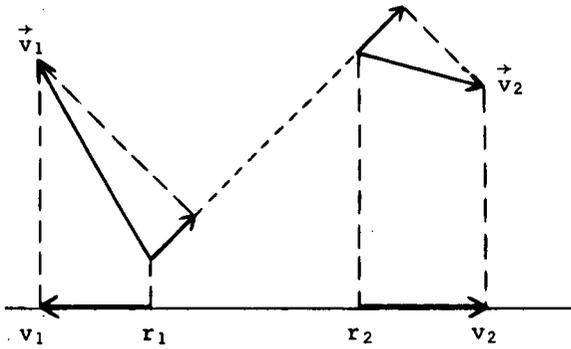


FIGURE II-2

lasers à gaz <sup>(48)</sup> (Lorsque le noyau correct est utilisé, la stabilité de la distribution de Maxwell est assurée dans le cas d'un milieu infini, c'est-à-dire dans le cas d'une réabsorption totale de la raie de fluorescence.).

Avec les approximations ci-dessus (21) se simplifie :

$$\sum_{z, k'} \int \gamma_{\beta z} \alpha_{\beta}^{kk'}(v, r, v', r') \rho_{\beta q}^{k'}(v', r', t) dv' dr' \approx \sum_z \gamma_{\beta z} \alpha_{\beta}(k, z) x_z W_M(v) \int \rho_{\beta q}^k(v', r, t) dv' \quad (22)$$

Dans cette expression  $\gamma_{\beta z}$ ,  $\alpha_{\beta}(k, z)$  et  $x_z$  sont les quantités définies dans la formule (20).

En effet, il est nécessaire que le deuxième membre de (21) s'écrive  $-\gamma_{\beta}(k) \rho_{\beta q}^k(r, t)$  après intégration sur  $v$ .

c) Expression générale du terme de relaxation

En regroupant les termes de collision et les termes d'émission spontanée, on obtient :

$$\left( \frac{d}{dt} \rho_{bq}^k(v, r, t) \right)_{rel} = -\Gamma'_b(k) \rho_{bq}^k(v, r, t) + \gamma'_b(k) W_M(v) \int \rho_{bq}^k(v', r, t) dv' \quad (23-a)$$

$$\left( \frac{d}{dt} \rho_{aq}^k(v, r, t) \right)_{rel+tr} = -\Gamma'_a(k) \rho_{aq}^k(v, r, t) + \gamma'_a(k) W_M(v) \int \rho_{aq}^k(v', r, t) dv' + \theta(b, a, k) \rho_{bq}^k(v, r, t) \quad (23-b)$$

$$\left( \frac{d}{dt} \rho_{abq}^k(v, r, t) \right)_{rel} = -G_{ab}(k) \rho_{abq}^k(v, r, t) + g_{ab}(k) W_M(v) \int \rho_{abq}^k(v', r, t) dv' \quad (23-c)$$

Dans chacune de ces expressions, le premier terme du second membre représente la disparition de la grandeur tensorielle  $\rho_{\beta q}^k$ , du paquet de vitesses  $v$ , soit parce que cette grandeur est détruite, soit parce que l'atome qui porte cette grandeur change de vitesse. Les probabilités de "départ" sont données par :

$$\Gamma'_\beta(k) = \gamma_\beta + (\Gamma'_\beta(k))_{coll} \quad (\gamma_\beta = \frac{1}{\tau_\beta} ; \beta = a \text{ ou } b) \quad (24-a)$$

$$G_{ab}(k) = G_{ba}^*(k) = \frac{1}{2} (\gamma_a + \gamma_b) + (\Gamma'_{ab}(k))_{\text{coll}} - i\Delta(k) = \Gamma'_{ab}(k) - i\Delta(k) \quad (24-b)$$

La partie imaginaire de  $G_{ab}$  tient compte du déphasage des grandeurs optiques par les collisions.

Le deuxième terme des expressions (23) représente "l'arrivée" dans le paquet de vitesse  $v$  d'atomes provenant de n'importe quelle vitesse  $v'$ . Suivant les approximations discutées aux paragraphes précédents, après un processus changeant la vitesse, la distribution de celle-ci est Maxwellienne quelle que soit la vitesse initiale. La probabilité d'un changement de vitesse conservant la grandeur tensorielle  $\alpha\beta T^k_q$  est donnée par l'une des expressions :

$$\gamma'_\beta(k) = \sum_i \gamma_{\beta i} \alpha_\beta(k, i) x_i + (\gamma'_\beta(k))_{\text{coll}} \quad (25-a)$$

$$g_{ab}(k) = g_{ba}^*(k) = (\gamma'_{ab}(k))_{\text{coll}} - i\Delta'(k) = \gamma'_{ab}(k) - i\Delta'(k) \quad (25-b)$$

On voit que les collisions changeant la vitesse et la diffusion multiple ont le même effet sur les équations d'évolution, par l'intermédiaire de  $\gamma'_\beta(k)$ . Ces deux phénomènes participent à ce que nous appellerons la diffusion de la vitesse des atomes excités. Ce processus ne prendra une grande importance que pour les effets non linéaires. Nous montrerons (§ VIII-C), à l'aide de nos mesures de temps de relaxations, que la majeure partie de l'effet, dans le cas de la raie laser 6.328 Å ( $3s_2 \leftrightarrow 2p_4$ ) provient de la diffusion multiple de la raie de résonance  $3s_2 \rightarrow$  fondamental ( $1p_0$ ).

Lorsqu'on ne s'intéresse qu'à l'ensemble des atomes sans distinguer leur vitesse (cas du pompage optique conventionnel et certains cas particuliers du pompage laser où l'on peut intégrer en  $v$  avant de résoudre les équations) la relaxation de la matrice densité globale (pour chacun des niveaux) s'obtient en intégrant (23-a et b) sur  $v$  :

$$\left[ \frac{d}{dt} \bar{\rho}^k_{\beta q}(r, t) \right] = -(\Gamma'_\beta(k) - \gamma'_\beta(k)) \bar{\rho}^k_{\beta q}(r, t) = -\Gamma_\beta(k) \bar{\rho}^k_{\beta q} \quad (26-a)$$

Nous rappelons que :  $\bar{\rho}(r, t) = \int \rho(v, r, t) dv$  et que  $\int W_M(v) dv = 1$ .

$$\Gamma_\beta(k) = \Gamma'_\beta(k) - \gamma'_\beta(k) \quad (26-b)$$

est l'inverse du temps de relaxation des expériences de pompage optique "classique" pour lesquelles il y a découplage entre les variables internes et externes et pour lesquelles seule compte la matrice densité totale  $\bar{\rho}(r, t)$ .

#### REMARQUE.

Par abus de langage, nous parlerons souvent d'atomes qui ont changé de vitesse, même dans le cas de la diffusion multiple. Il est bien évident, dans ce cas, qu'il s'agit du trans-

fert des propriétés physiques d'un atome à un autre de vitesse différente. Cet abus de langage est possible tant que l'on peut ignorer la position relative des atomes.

6) L'Hamiltonien

$$\mathcal{H}(\vec{r}, t) = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_Z + R(\vec{r}, t)$$

a)  $\mathcal{H}_0$  est l'hamiltonien de l'atome isolé non perturbé

$$\mathcal{H}_0 = \left( \begin{array}{cc|cc} W_a & 0 & & \\ \dots & \dots & & \\ 0 & W_a & & \\ \dots & \dots & & \\ 0 & & W_b & 0 \\ \dots & \dots & \dots & \dots \\ 0 & & 0 & W_b \end{array} \right) = W_a \sqrt{2J_a+1} \cdot {}_a T_0^0 + W_b \sqrt{2J_b+1} \cdot {}_b T_0^0 \quad (27-a)$$

$W_a$  et  $W_b$  sont les énergies des niveaux a et b.

b)  $\mathcal{H}_Z = -\vec{M} \cdot \vec{H}$  est l'hamiltonien Zeeman du moment magnétique  $\vec{M}$  plongé dans le champ  $\vec{H}$ .

Puisque nous avons fait l'hypothèse de l'isotropie des relaxations, nous pouvons choisir l'axe de quantification Oz suivant  $\vec{H}$  (au chapitre XI, nous discuterons ce problème dans le cas où la relaxation n'est pas isotrope) :

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_Z &= -M_z H = (\omega_a P_a + \omega_b P_b) J_z \\ &= \omega_a \sqrt{\frac{J_a(J_a+1)(2J_a+1)}{3}} \cdot {}_a T_0^1 + \omega_b \sqrt{\frac{J_b(J_b+1)(2J_b+1)}{3}} \cdot {}_b T_0^1 \end{aligned} \quad (27-b)$$

$P_\alpha$  est le projecteur sur le niveau  $\alpha$  et  $\omega_\alpha = g_\alpha \beta H$  est la fréquence de Larmor ( $\beta =$  magnéton de Bohr,  $g_\alpha =$  facteur de Landé). La transformation de  $P_\alpha J_z$  en  ${}_a T_0^1$  se fait aisément à l'aide du théorème de WIGNER-ECKART en remarquant que  $\langle J || \vec{J} || J \rangle = \sqrt{J(J+1)(2J+1)}$ .

c)  $R(\vec{r}, t)$  est l'hamiltonien d'interaction avec le champ électrique  $\vec{E}$  du faisceau laser traité classiquement. A l'approximation dipolaire électrique, on peut écrire ( $\vec{P}$  = opérateur dipôle électrique) :

$$R(\vec{r}, t) = -\vec{P} \cdot \vec{E}(\vec{r}, t) \quad (28)$$

Le faisceau laser est formé de plusieurs modes. Chacun d'eux, repéré par un indice  $\mu$ , est traité comme une onde plane de pulsation  $\omega_\mu$  et de vecteur d'onde  $\vec{k}_\mu$ . Tous les modes se propagent suivant le même axe,  $E(\vec{r}, t)$  ne dépend que de la projection  $r$  de  $\vec{r}$  sur cet axe :

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_{\mu} \vec{E}^{\mu}(\vec{r}, t) = \sum_{\mu} \left[ \vec{\mathcal{E}}^{\mu} e^{-i(\omega_{\mu} t - \vec{k}_{\mu} \cdot \vec{r})} + \vec{\mathcal{E}}^{\mu*} e^{i(\omega_{\mu} t - \vec{k}_{\mu} \cdot \vec{r})} \right] \quad (29)$$

Les vecteurs complexes  $\vec{\mathcal{E}}^\mu$  contiennent la phase relative des différents modes. Cette notation complexe est commode pour représenter un champ électrique de n'importe quelle polarisation : pour une polarisation rectiligne, les composantes du champ sur trois axes orthogonaux quelconques vibrent en phase; on peut donc écrire :

$$\vec{\mathcal{E}}^\mu = \vec{E}^\mu e^{-i\phi_\mu} \quad \text{avec } \vec{E}^\mu \text{ réel} \quad (30)$$

Pour une polarisation elliptique au contraire, les trois composantes de  $\vec{\mathcal{E}}^\mu$  auront des phases différentes.

Si la cellule est placée à l'intérieur de la cavité laser, elle est soumise à une onde stationnaire. Dans ce cas, chaque mode sera représenté par deux ondes planes  $\mu_+$  et  $\mu_-$  telles que :

$$\omega_{\mu_+} = \omega_{\mu_-}; \quad k_{\mu_+} = -k_{\mu_-}. \quad \text{Nous expliciterons la phase relative de } \vec{\mathcal{E}}^{\mu_+} \text{ et } \vec{\mathcal{E}}^{\mu_-} \text{ au § IV-2.}$$

Pour exprimer l'opérateur  $R(r,t)$  dans la base des opérateurs tensoriels irréductibles, nous exprimons les vecteurs et l'opérateur dipôle par leurs composantes standard (MESSIAH <sup>(43)</sup>, App. C, § V). Remarquons que l'axe de quantification Oz est l'axe du champ magnétique et non l'axe du faisceau laser défini par  $\vec{k}_\mu$ . Nous avons :

$$E_0 = E_z; \quad E_{\pm 1} = \mp \frac{1}{\sqrt{2}} (E_x \pm iE_y) \quad (31)$$

$$R(r,t) = -\sum_q (-)^q P_q E_{-q} = -\sum_q (-)^q P_q \left[ \mathcal{E}^\mu_{-q} e^{-i(\omega_\mu t - k_\mu r)} + (\mathcal{E}^\mu)^*_{-q} e^{i(\omega_\mu t - k_\mu r)} \right] \quad (32)$$

Comme l'opérateur dipôle électrique,  $R$  n'a pas d'éléments de matrice à l'intérieur de chacun des niveaux  $a$  ou  $b$  (opérateur impair) :

$$R = \begin{pmatrix} 0 & abR \\ \dots & \dots \\ baR & 0 \end{pmatrix}; \quad abR = baR^\dagger \quad (33)$$

En utilisant le théorème de WIGNER-ECKART (A 1), on peut écrire :

$$\vec{P} = \frac{P_{ab}}{\sqrt{3}} abT^{(1)} + \frac{P_{ba}}{\sqrt{3}} baT^{(1)} \quad (34)$$

$$P_{ab} = \langle J_a || \vec{P} || J_b \rangle \quad (35)$$

est l'élément de matrice réduit de l'opérateur  $\vec{P}$ . Cet opérateur étant hermitique, on a (MESSIAH <sup>(43)</sup>, p. 925, formule 85) :

$$P_{ba} = (-)^{J_a - J_b} P_{ab}^* \quad (36)$$

On peut alors écrire :

$$\begin{aligned}
 a_b^R(r,t) &= -\frac{P_{ab}}{\sqrt{3}} \sum_q (-)^q a_b^T q^1 E_{-q} \\
 b_a^R(r,t) &= -\frac{P_{ba}}{\sqrt{3}} \sum_q (-)^q b_a^T q^1 E_{-q} \\
 &= -\frac{P_{ab}^*}{\sqrt{3}} \sum_q (-)^q a_b^T q^1 E_{-q}^* = a_b^R \dagger
 \end{aligned}
 \tag{37}$$

REMARQUE.

On introduit couramment <sup>(3)</sup> comme vecteurs de base les polarisations  $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$  et  $\pi$  qui s'écrivent respectivement :

$$\begin{aligned}
 \vec{u}_{+1} &= -\frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{u}_x + i\vec{u}_y) \\
 \vec{u}_{-1} &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{u}_x - i\vec{u}_y) ; \quad \vec{u}_0 = \vec{u}_z
 \end{aligned}
 \tag{38}$$

Avec cette base et la définition (31), on obtient (note)

$$\vec{E} = \sum_q (-)^q E_{-q} \vec{u}_q
 \tag{39}$$

Dans la base réelle (x,y,z), on a par définition :

$$\vec{\mathcal{E}}^* = \sum_i \mathcal{E}_i^* \vec{u}_i \quad (i = x,y,z)$$

On trouve alors :

$$(\vec{\mathcal{E}}^*)_q = (-)^q (\mathcal{E}_{-q})^* \quad (q = 0, \pm 1)
 \tag{40}$$

En particulier, pour un vecteur réel, on a :

$$E_q = (-)^q E_{-q}^*
 \tag{41}$$

Au § V-B, nous discuterons en détail la façon d'obtenir les composantes standard du vecteur champ électrique pour un faisceau lumineux de polarisation quelconque.

(note)

On voit que les composantes standard définies en (31) ne sont pas les composantes de E dans cette base (38) (cf. FAROUX <sup>(44)</sup>). Elles apparaissent en fait comme des composantes covariantes : avec la définition  $\vec{A} \cdot \vec{B} = \sum_q (-)^q A_q B_{-q}$  (MESSIAH <sup>(43)</sup>, C87, p. 925), on a :  $A_q = \vec{A} \cdot \vec{u}_q$ .

B - RESOLUTION DES EQUATIONS

1) Méthode d'approximation par itération

Sauf dans des cas très particuliers étudiés au chapitre III (par exemple laser monomode en onde progressive sur des atomes sans structure Zeeman <sup>(45)</sup>), nous ne pouvons pas résoudre rigoureusement l'équation (3). Nous devons utiliser un calcul de perturbation (LAMB <sup>(4)</sup>, BLOEMBERGEN <sup>(46)</sup>).

Nous cherchons un développement de la matrice  $\rho$  en fonction des puissances successives du champ électrique de l'onde laser :  $\rho = {}^{(0)}\rho + {}^{(1)}\rho + {}^{(2)}\rho \dots + {}^{(n)}\rho \dots$

Les ordres successifs peuvent être calculés par itération :

$$\begin{aligned} {}^{(0)}\dot{\rho} &= -i [ \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_Z, {}^{(0)}\rho ] + \left( \frac{d {}^{(0)}\rho}{dt} \right)_{\text{rel}} + \Lambda \\ {}^{(1)}\dot{\rho} &= -i [ \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_Z, {}^{(1)}\rho ] + \left( \frac{d {}^{(1)}\rho}{dt} \right)_{\text{rel.}} + \text{tr.} -i [R, {}^{(0)}\rho] \\ \dots\dots \\ {}^{(n)}\dot{\rho} &= -i [ \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_Z, {}^{(n)}\rho ] + \left( \frac{d {}^{(n)}\rho}{dt} \right)_{\text{rel.}} + \text{tr.} -i [R, {}^{(n-1)}\rho] \end{aligned} \quad (42)$$

Dans ce paragraphe,  $\dot{\rho}$  est l'abréviation de  $\frac{d\rho}{dt}$  de l'équation (2) ou de  $\frac{\partial\rho}{\partial t} + v \frac{\partial\rho}{\partial r}$  de l'équation (3). En raison de ce qui a été dit au § A-5-b, le terme de transfert n'existe pas à l'ordre (0), car il est inclus dans  $\Lambda$ . Nous ne cherchons que la solution stationnaire de ces équations :

A l'ordre (0), le terme source  $\Lambda$  ne contient pas de cohérences optiques. La solution stationnaire de  ${}^{(0)}\rho$  n'en contient donc pas puisque les autres termes de l'équation ne couplent pas les cohérences optiques aux matrices  ${}_a\rho$  et  ${}_b\rho$  des niveaux :

A l'ordre (1), le terme source est de la forme  ${}_{ab}R {}^{(0)}{}_b\rho - {}^{(0)}{}_a\rho {}_{ab}R$  : il ne contient que des termes de cohérence optique. Il en sera de même pour  ${}^{(1)}\rho$ . A l'ordre (2), on n'obtient pas de cohérences optiques car les termes sources sont de la forme  ${}_{ab}R {}^{(1)}{}_ba\rho - {}^{(1)}{}_ab\rho {}_{ba}R$  ou  ${}_{ba}R {}^{(1)}{}_ab\rho - {}^{(1)}{}_ba\rho {}_{ab}R$ . Ainsi de suite, on montre que :

$${}_{a|}^{(2n+1)}\rho = {}_{b|}^{(2n+1)}\rho = {}_{ab|}^{(2n)}\rho = {}_{ba|}^{(2n)}\rho = 0 \quad (43)$$

Aux ordres pairs, nous n'avons que des "cohérences Zeeman" et des "populations". Aux ordres impairs, nous n'avons que des "cohérences optiques".

2) Réponse linéaire et saturation pour les grandeurs atomiques et les grandeurs optiques

La matrice densité contient toutes les informations physiques sur l'état du système atomique : elle permet de déduire l'évolution de toutes les grandeurs physiques macroscopiques. On peut classer ces grandeurs en deux catégories : les grandeurs atomiques (nous avons donné, au § A-3, l'expression de deux d'entre elles) qui s'expriment uniquement en fonction de  $a_l^0$  et  $b_l^0$ , et les grandeurs optiques qui s'expriment en fonction de  $a_l^0$  et  $b_l^0$ .

En raison de la relation (43), on voit que les grandeurs optiques, comme  $a_l^0$  et  $b_l^0$ , s'expriment suivant un développement en puissances impaires du champ électrique de l'onde laser. Ainsi la polarisation électrique macroscopique  $\vec{P}$ , aux fréquences voisines de la fréquence laser peut s'écrire formellement :

$$\vec{P} = \overline{\chi}_L \cdot \vec{E} + \overline{\chi}_{NL}^{(3)} : (\vec{E} \vec{E} \vec{E}) + \dots$$

Le premier ordre du calcul de perturbation permettra de calculer  $\overline{\chi}_L \cdot \vec{E}$  ( $\chi_L$  = susceptibilité linéaire) c'est-à-dire la partie de  $\vec{P}$  qui varie linéairement avec le champ électrique. Le troisième ordre de perturbation permettra de calculer la susceptibilité non linéaire d'ordre 3,  $\chi_{NL}^{(3)}$ , dont le rôle est très important dans la théorie du laser (4).

Les grandeurs atomiques, au contraire, s'expriment, comme  $a_l^0$  et  $b_l^0$ , en fonction des puissances paires du champ électrique optique. Puisque l'intensité totale du laser est proportionnelle à  $I_\ell = \sum_v |\mathcal{E}^v|^2$ , on voit que le développement de perturbation du paragraphe précédent nous permet d'exprimer les grandeurs atomiques sous forme d'un développement par rapport à l'intensité du faisceau laser. Par exemple, la population du niveau b s'écrira (note) :

$$n_b = n_b^{(0)} + n_b^{(2)} I_\ell + n_b^{(4)} I_\ell^2 + \dots$$

Ainsi le deuxième ordre de perturbation donne une modification du milieu atomique linéaire par rapport à l'intensité du laser. Les ordres supérieurs donnent des termes non linéaires dont on comprend aisément l'importance. La modification de population (par exemple) ne peut être indéfiniment proportionnelle à l'intensité laser. Pour un faisceau laser très intense, on peut au plus obtenir une égalisation des populations des niveaux a et b. On peut dire que le milieu atomique se sature (il devient transparent).

En raison des constatations ci-dessus, nous conviendrons d'appeler réponse linéaire des atomes l'ensemble des termes d'ordre (1) et d'ordre (2) dans le développement de perturbation. De même, nous appellerons saturation les termes d'ordre supérieur.

(note) à condition de faire varier l'intensité totale sans modifier l'intensité relative ni la phase relative des modes.

3) Expression tensorielle des équations de récurrence

En raison des hypothèses faites sur la symétrie des relaxations, nous allons résoudre les équations (42) dans le formalisme des opérateurs tensoriels. Pour cela, nous projetons chacune des équations sur chaque opérateur de base :

$${}_{\alpha\beta}^{(n)\cdot k}\rho_Q^k = -i \operatorname{Tr} \left\{ \left( [\mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_2, {}^{(n)}\rho] + [R, {}^{(n-1)}\rho] \right) {}_{\alpha\beta} T_Q^{k\dagger} \right\} + \left( \frac{d}{dt} {}_{\alpha\beta}^{(n)}\rho_Q^k \right)_{\text{rel}} + \operatorname{tr} \quad (44)$$

Il suffit de remplacer  $\rho$  dans le second membre par son développement en  $T_Q^k$  et de calculer la trace des différents termes. Le calcul est explicité à l'appendice B. On obtient (ici  $\rho(v)$  signifie en fait  $\rho(v, r, t)$ ) :

$$\begin{aligned} (2n)_{a\beta}^{(n)\cdot k}\rho_Q^k(v) = & -(iQ\omega_a + \Gamma'_a(k)) (2n)_{a\beta}^{(n)}\rho_Q^k(v) + \gamma'_a(k) W_M(v) \int (2n)_{a\beta}^{(n)}\rho_Q^k(v') dv' + \Theta(b, a, k) (2n)_{b\beta}^{(n)}\rho_Q^k(v) \\ & + i \sum_{k'Q'q} (-)^{2J_b+Q'} \sqrt{2k+1} \sqrt{2k'+1} \begin{Bmatrix} k' & 1 & k \\ Q' & q & -Q \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k' & 1 & k \\ J_a & J_a & J_b \end{Bmatrix} E_{-q} \left[ (2n-1)_{ba\beta}^{(n)}\rho_{Q'}^{k'}(v) P_{ab} + (-)^{k+k'} (2n-1)_{ab\beta}^{(n)}\rho_{Q'}^{k'}(v) P_{ba} \right] \end{aligned} \quad (45-a)$$

$$\begin{aligned} (2n)_{b\beta}^{(n)\cdot k}\rho_Q^k(v) = & -(iQ\omega_b + \Gamma'_b(k)) (2n)_{b\beta}^{(n)}\rho_Q^k(v) + \gamma'_b(k) W_M(v) \int (2n)_{b\beta}^{(n)}\rho_Q^k(v') dv' \\ & + i \sum_{k'Q'q} (-)^{2J_a+Q'} \sqrt{2k+1} \sqrt{2k'+1} \begin{Bmatrix} k' & 1 & k \\ Q' & q & -Q \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k' & 1 & k \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix} E_{-q} \left[ (2n-1)_{ab\beta}^{(n)}\rho_{Q'}^{k'}(v) P_{ba} + (-)^{k+k'} (2n-1)_{ba\beta}^{(n)}\rho_{Q'}^{k'}(v) P_{ab} \right] \end{aligned} \quad (45-b)$$

$$\begin{aligned} (2n+1)_{ab\beta}^{(n)\cdot k}\rho_Q^k(v) = & - \left[ i \left( \frac{\omega_a + \omega_b}{2} Q - \omega \right) + G_{ab}(k) \right] (2n+1)_{ab\beta}^{(n)}\rho_Q^k(v) + g_{ab}(k) W_M(v) \int (2n+1)_{ab\beta}^{(n)}\rho_Q^k(v') dv' \\ & - i \frac{\omega_a - \omega_b}{2} \left\{ Q \frac{J_a(J_a+1) - J_b(J_b+1)}{k(k+1)} (2n+1)_{ab\beta}^{(n)}\rho_{Q'}^{k+a}(v) + (2n+1)_{ab\beta}^{(n)}\rho_{Q'}^{k-1+a}(v) + (2n+1)_{ab\beta}^{(n)}\rho_{Q'}^{k+1+a}(v) \right\} \\ & + i \sum_{k'Q'q} (-)^{J_a+J_b+Q'} \sqrt{2k+1} \sqrt{2k'+1} P_{ab} E_{-q} \begin{Bmatrix} k' & 1 & k \\ Q' & q & -Q \end{Bmatrix} \left[ (2n)_{b\beta}^{(n)}\rho_{Q'}^{k'}(v) \begin{Bmatrix} k' & 1 & k \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} + (-)^{k+k'} (2n)_{a\beta}^{(n)}\rho_{Q'}^{k'}(v) \begin{Bmatrix} k' & 1 & k \\ J_b & J_a & J_a \end{Bmatrix} \right] \end{aligned} \quad (45-c)$$

$$(2n+1)_{ba\beta}^{(n)\cdot k}\rho_Q^k = (-)^{J_a+J_b+Q} (2n+1)_{ab\beta}^{(n)*} \rho_Q^k \quad (45-d)$$

$\omega = \omega_b - \omega_a$ , qui est la fréquence centrale de la raie  $b \rightarrow a$ , provient de  $\mathcal{H}_0$  ( $\omega \sim$  fréquences du laser). Les termes contenant les écarts Zeeman  $\omega_a$  et  $\omega_b$  proviennent évidemment de  $\mathcal{H}_2$ . Dans (45-c), on a posé, selon (B-7) :

$$a(k) = \frac{1}{k} \sqrt{\frac{[(J_a+J_b+1)^2 - k^2][k^2 - (J_a-J_b)^2][k^2 - Q^2]}{4k^2 - 1}}$$

Le terme source de chaque équation contient une somme sur les indices  $k'$  et  $Q'$  qui caractérisent les composantes de la matrice densité calculées à l'ordre d'itération précédent et une somme sur l'indice  $q$  qui caractérise les trois composantes standard du champ électrique  $\vec{E}$ . Les  $\{3J\}$  et  $\{6J\}$  sont des coefficients angulaires qui expriment, entre autres, la possibilité de passer de  ${}^{(n)}\rho_Q^{k'}$  à  ${}^{(n+1)}\rho_Q^k$  par l'action de la composante  $q$  du champ électrique : ces coefficients permettent de tenir compte de la polarisation de la lumière. La probabilité de transition de la raie laser intervient par  $P_{ab}$  et  $P_{ba}$ . Enfin, on reconnaît aisément, dans les équations (45), les termes de relaxation et de transfert sous leur forme (23).

Lorsque le terme source provenant de l'ordre  $(2n-1)$  est connu, les équations (45-b) seront faciles à résoudre (§B-4-b) puisque ce sont des équations différentielles indépendantes. Une fois ces équations résolues, il suffit d'en reporter les solutions  ${}^{(2n)}\rho_Q^k$  dans le terme de transfert des équations (45-a). Ces équations sont également des équations indépendantes facilement solubles. Elles ne diffèrent de (45-b) que par la présence de deux termes source : l'un provient de l'émission stimulée (il s'obtient à partir de l'ordre de perturbation précédent) et l'autre de l'émission spontanée.

Les équations (45-c), au contraire, forment un système différentiel car le terme Zeeman introduit un couplage entre les différents ordres tensoriels. Ce couplage exprime le fait que, en général, les composantes  $\sigma^+$ ,  $\sigma^-$  et  $\pi$  de la raie optique ne sont pas simples (effet Zeeman "anormal") : dans la base  $|J, M\rangle$  chaque élément de matrice  $\rho_{M_a M_b}$  a une fréquence particulière de précession libre  $(\omega_a + M_b \omega_b - M_a \omega_a)$ . Les  $\rho_{ab}^k$  de même  $q$ , mais de  $k$  différent, sont des combinaisons linéaires différentes de tous les éléments  $\rho_{M_a M_b}$  tels que  $q = M_a - M_b$  ; ils n'ont donc pas de fréquence de précession propre si  $\omega_a \neq \omega_b$ . En effet :

$$\omega_a + M_b \omega_b - M_a \omega_a = \omega_a - q \frac{\omega_a + \omega_b}{2} + (M_b + M_a) \frac{(\omega_b - \omega_a)}{2} \quad (46)$$

Ceci explique que les équations (45-c) sont couplées. On peut dire que l'hamiltonien Zeeman est diagonal dans la base  $|J_a M_a \rangle \langle J_b M_b|$  et non dans la base  $ab T_q^k$  de l'espace de Liouville des opérateurs.

Il y a deux cas simples où ces couplages disparaissent :

- L'un des  $J$  est nul (effet Zeeman normal). Dans ce cas, il n'y a que des cohérences optiques d'ordre  $k = 1$ .
- Les deux niveaux ont le même facteur de Landé ( $\omega_a - \omega_b = 0$ ). Alors les termes de couplage de (45-c) s'annulent car tous les éléments de matrice  $\rho_{M_a M_b}$  contribuant à  $\rho_{ab}^k$  ont la même fréquence propre d'oscillation.

Dans le cas général (bien que le système différentiel soit soluble dans chaque cas particulier), nous supposerons, pour simplifier le calcul, que nous sommes dans l'un des deux cas précédents. En effet, les raies laser  $1,52 \mu$  et  $7.305 \text{ \AA}$  du néon correspondent au premier cas et la raie  $6.328 \text{ \AA}$

correspond presque au second :  $g_a - g_b \sim 5 \times 10^{-3} g_a$ . Tant que le champ magnétique n'est pas trop fort ( $< 100$  gauss),  $\omega_b - \omega_a$  est négligeable devant  $\Gamma_{ab}$ .

Enfin, pour les effets linéaires (2e ordre), nous montrerons *a posteriori* que l'approximation reste valable tant que  $\omega_b - \omega_a \ll \Delta v$  (largeur Doppler).

Lorsque  $\omega_a - \omega_b$  devient trop important, la discussion ci-dessus nous montre que la base  $|J_a M_a \rangle \langle J_b M_b|$  permet de découpler les équations (45-c) en ce qui concerne l'hamiltonien Zeeman, mais ceci n'est possible que si  $G_{ab}(k)$  et  $g_{ab}(k)$  sont en fait indépendants de  $k$ . En effet, s'il n'en est pas ainsi, la relaxation qui est diagonale dans la base  $ab T_q^k$  (cette base a été construite pour cela) ne l'est plus dans la base  $|J_a M_a \rangle \langle J_b M_b|$ . Dans certains cas, en particulier pour le calcul de la position des résonances de saturation (chapitre VII), il sera préférable de traiter rigoureusement l'hamiltonien Zeeman et de supposer  $G_{ab}$  et  $g_{ab}$  indépendants de  $k$  (ce qui est sans doute assez proche de la réalité). Nous donnons ce calcul à l'appendice C. Dans ce calcul, nous traitons les cohérences optiques sous forme d'éléments de matrice  $\rho_{M_a M_b}^0$  mais nous gardons la base  $\alpha T_q^k$  à l'intérieur de chacun des niveaux de façon à traiter correctement la relaxation des grandeurs atomiques. Cette méthode de calcul aura sa justification lorsque nous montrerons que, pour l'étude des grandeurs atomiques, la valeur précise des temps de relaxation des grandeurs optiques a peu d'influence.

#### 4) Forme générale de la solution stationnaire

##### a) Ordre zéro

A l'ordre zéro, les équations (45-a et b) s'écrivent :

$$\left( \frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial r} \right) \rho_{\alpha Q}^{(0)k} = -(iQ\omega_{\alpha} + \Gamma'_{\alpha}(k)) \rho_{\alpha Q}^{(0)k} + \gamma'_{\alpha}(k) W_M(v) \int \rho_{\alpha Q}^{(0)k}(v', r, t) dv' + W_M(v) \alpha \lambda_Q^k \quad (47)$$

Comme le terme source  $\alpha \lambda_Q^k$ , la solution stationnaire ne dépend ni de  $r$  ni de  $t$ . Pour obtenir cette solution, il suffit donc d'égaliser le second membre à zéro. Après intégration sur les vitesses, on trouve ( $\int W_M(v) dv = 1$ ) :

$$\int \rho_{\alpha Q}^{(0)k}(v, r, t) dv = \rho_{\alpha Q}^{(0)k}(r, t) = \frac{\alpha \lambda_Q^k}{\Gamma'_{\alpha}(k) - \gamma'_{\alpha}(k) + iQ\omega_{\alpha}} = \frac{\alpha \lambda_Q^k}{\Gamma_{\alpha}(k) + iQ\omega_{\alpha}} \quad (48-a)$$

En reportant cette valeur dans le terme "d'arrivée" de (47), on obtient en régime stationnaire :

$$\rho_{\alpha Q}^{(0)k}(v, r, t) = \frac{\alpha \lambda_Q^k W_M(v)}{\Gamma'_{\alpha}(k) + iQ\omega_{\alpha}} \left[ 1 + \frac{\gamma'_{\alpha}(k)}{\Gamma_{\alpha}(k) + iQ\omega_{\alpha}} \right] = \frac{\alpha \lambda_Q^k W_M(v)}{\Gamma_{\alpha}(k) + iQ\omega_{\alpha}} \quad (48-b)$$

On voit que le coefficient de relaxation effectif,  $\Gamma_{\alpha}(k) = \Gamma'_{\alpha}(k) - \gamma'_{\alpha}(k)$  est celui des expériences de pompage optique classique défini en (26-b). Ceci est physiquement évident pour la matrice

densité totale  ${}^{(0)}\bar{\rho}$  puisque, après intégration sur les vitesses, on ne peut observer les phénomènes de changement de vitesse, et puisqu'à l'ordre zéro, il n'y a pas encore d'interaction avec le laser. La propriété est également valable pour  $\rho(v)$  car le modèle utilisé pour les collisions et la diffusion multiple assure la stabilité de la distribution de Maxwell introduite par le terme d'excitation  $\Lambda(v)$ . On a donc toujours  ${}^{(0)}\rho(v) = {}^{(0)}\bar{\rho} W_M(v)$ .

REMARQUE.

Comme nous l'avons signalé au § II-A-4, les termes sources  $\lambda_Q^k$  ( $Q \neq 0$ ) peuvent dépendre du champ magnétique du fait des cascades provenant de tous les niveaux supérieurs. En particulier, si l'on singularise la cascade de b vers a, on voit que :

$${}_a\lambda_Q^k = {}_a\lambda'_Q{}^k + \Theta(b,a,k) \frac{{}_b\lambda_Q^k}{\Gamma_b(k) + iQ\omega_b} \quad (49)$$

Si aucun autre niveau ne présente d'anisotropie,  ${}_b\lambda_Q^k$  et  ${}_a\lambda'_Q{}^k$  ne dépendent pas du champ magnétique.

b) Ordres supérieurs

La complexité des équations croît très vite au fur et à mesure que l'ordre de perturbation croît. En fait, cette complexité provient du très grand nombre de termes et du grand nombre d'indices de sommation, mais la forme des équations reste simple et identique à tous les ordres de perturbation. Dans ce paragraphe, notre but est de dégager la forme générale de ces équations et de leur solution stationnaire.

A chaque ordre de perturbation, chaque grandeur physique obéit à une équation différentielle linéaire dont le terme source est la somme d'un certain nombre de termes oscillants. En raison de la linéarité des équations, la solution sera la somme des solutions correspondant à chaque terme source.

A l'ordre (1), le terme source ne dépend de t et de r que par :

$$E_{-q} = \sum_{\mu} \left[ \sum_{-q}^{\mu} e^{-i(\omega_{\mu}t - k_{\mu}r)} + (-)^q \sum_q^{\mu*} e^{i(\omega_{\mu}t - k_{\mu}r)} \right]$$

A priori,  ${}_{ab}^{(1)}\rho$  et  ${}_{ba}^{(1)}\rho$  seront des sommes de termes oscillants aux mêmes fréquences que ces termes sources (régime d'oscillations forcées).

Au second ordre, les termes sources provenant des produits  $E_{-q} {}_{ab}^{(1)}\rho$  sont de la forme :

$$e^{i\epsilon_{\mu}[\omega_{\mu}t - k_{\mu}r]} e^{i\epsilon_{\nu}[\omega_{\nu}t - k_{\nu}r]} \quad (\epsilon_{\mu} = \pm 1 ; \quad \epsilon_{\nu} = \pm 1)$$

La solution stationnaire sera donc une somme de termes oscillants de cette forme. Les mêmes fréquences interviennent dans l'équation (45-a) et dans l'équation (45-b). Le terme de transfert n'introduit dans l'équation (45-a) que des fréquences déjà présentes dans son terme source direct. Le transfert ne fait

donc que modifier l'amplitude de chaque terme source sans changer la forme de l'équation.

Par récurrence, on voit que l'équation d'ordre  $n$  aura des termes sources oscillants de la forme :

$$e^{i [\Omega_n t - K_n r]} \quad \text{avec}$$

$$\Omega_n = \sum_{i=1}^n \varepsilon_{\mu_i} \omega_{\mu_i} ; \quad K_n = \sum_{i=1}^n \varepsilon_{\mu_i} k_{\mu_i} \quad \text{et} \quad \varepsilon_{\mu_i} = \pm 1 \quad (50)$$

A l'ordre  $n$ , il y a donc  $(2m)^n$  termes sources ( $m =$  nombre de modes, chaque mode comptant double dans le cas d'une onde stationnaire) correspondant à  $(2m)^n/n!$  fréquences différentes. Toutes les équations (45) peuvent donc se mettre sous la forme ( $\Omega$ ,  $\Gamma'$  et  $\gamma'$  sont la fréquence propre et les coefficients de relaxation de la grandeur physique  $f(v, r, t)$ ) :

$$\frac{\partial}{\partial t} f(v, r, t) + v \frac{\partial}{\partial r} f(v, r, t) = (i\Omega - \Gamma') f(v, r, t) + \gamma' W_M(v) \int f(v', r, t) dv' + \sum_{\Omega_n} A(v, \Omega_n) e^{i [\Omega_n t - K_n r]} \quad (51)$$

Cette équation a pour solution stationnaire :

$$f(v, r, t) = \sum_{\Omega_n} f(v, \Omega_n) e^{i [\Omega_n t - K_n r]} \quad (52-a)$$

avec :

$$i(\Omega_n - K_n v) f(v, \Omega_n) = (i\Omega - \Gamma') f(v, \Omega_n) + \gamma' W_M(v) \int f(v', \Omega_n) dv' + A(v, \Omega_n) \quad (52-b)$$

$$f(v, \Omega_n) = \frac{A(v, \Omega_n) + \gamma' W_M(v) \int f(v', \Omega_n) dv'}{\Gamma' - i(\Omega - \Omega_n + K_n v)} \quad (53)$$

En intégrant les deux membres par rapport à  $v$ , on trouve :

$$\bar{f}(\Omega_n) = \int f(v, \Omega_n) dv = \frac{\int \frac{A(v, \Omega_n) dv}{\Gamma' - i(\Omega - \Omega_n + K_n v)}}{1 - \gamma' \int \frac{W_M(v) dv}{\Gamma' - i(\Omega - \Omega_n + K_n v)}} \quad (54)$$

$$f(v, \Omega_n) = \frac{1}{\Gamma' - i(\Omega - \Omega_n + K_n v)} \left[ A(v, \Omega_n) + \frac{\gamma' W_M(v) \int \frac{A(v', \Omega_n) dv'}{\Gamma' - i(\Omega - \Omega_n + K_n v')}}{1 - \gamma' \int \frac{W_M(v') dv'}{\Gamma' - i(\Omega - \Omega_n + K_n v')}} \right] \quad (55)$$

L'interprétation physique de l'expression (55) peut se faire de la façon suivante :

- Le premier terme  $\frac{A(v, \Omega_n)}{\Gamma' - i(\Omega - \Omega_n + K_n v)}$  représente les atomes qui n'ont subi aucune diffusion de leur vitesse. A résonance, cette quantité est égale au débit d'excitation (pour l'ordre de perturbation n considéré)  $A(v, \Omega_n)$  divisé par le débit de départ  $\Gamma'$ . Il s'agit du débit de départ total  $\Gamma'$  qui tient compte à la fois de la probabilité de destruction de la grandeur considérée et de la probabilité de changement de la vitesse.

Le dénominateur résonnant modifie la phase et l'amplitude de l'oscillation forcée en fonction de la différence entre la fréquence  $\Omega_n - K_n v$  de cette oscillation (dans le référentiel de l'atome) et la fréquence propre  $\Omega$  de la grandeur atomique considérée. Il faut remarquer que le terme source  $A(v, \Omega_n)$  est une somme de termes contenant chacun (n-1) dénominateurs résonnants provenant des ordres de perturbation précédents.

- Le second terme représente les atomes qui ont subi des modifications de vitesse et dont la vitesse finale est v. C'est le terme "d'arrivée" des processus de diffusion de vitesse. Si l'on néglige le dénominateur  $1 - \gamma' \int \frac{W_M(v') dv'}{\Gamma' - i(\Omega - \Omega_n + K_n v')}$ , on comprend bien la forme de ce terme :  $\frac{A(v', \Omega_n)}{\Gamma' - i(\Omega - \Omega_n + K_n v')}$  représente l'évolution des atomes de vitesse v' avant qu'ils ne subissent une diffusion de vitesse;  $\gamma' W_M(v)$  est la probabilité qu'ils subissent un processus de diffusion leur donnant la vitesse finale v : suivant notre modèle, cette probabilité est indépendante de la vitesse initiale v'. Le dénominateur  $\Gamma' - i(\Omega - \Omega_n + K_n v)$  exprime l'évolution après le changement de vitesse. Enfin, il faut sommer les contributions de toutes les vitesses initiales v'.

Le dénominateur  $1 - \gamma' \int dv'(\dots)$  exprime le fait que l'atome peut subir un nombre quelconque de changements de vitesse. En développant en série le terme d'arrivée, on pourrait mettre en évidence séparément les atomes ayant subi 1, 2, ..., n, changements de vitesse.

Simplification. Nous rencontrerons un certain nombre de cas, très importants, pour lesquels on peut négliger  $K_n v$  devant  $\Gamma'$ . Dans ces cas, les dénominateurs ne dépendent plus de v et peuvent être sortis des intégrales. On obtient alors ( $\int W_M(v) dv = 1$ ) :

$$\bar{f}(\Omega_n) = \frac{\int A(v, \Omega_n) dv}{\Gamma' - \gamma' - i(\Omega - \Omega_n)} \quad (54-a)$$

$$f(v, \Omega_n) = \frac{1}{\Gamma' - i(\Omega - \Omega_n)} \left[ A(v, \Omega_n) + \frac{\gamma' W_M(v)}{\Gamma' - \gamma' - i(\Omega - \Omega_n)} \int A(v', \Omega_n) dv' \right] \quad (55-a)$$

où l'on voit apparaître (comme à l'ordre zéro) le coefficient de relaxation  $\Gamma = \Gamma' - \gamma'$  insensible à la diffusion de la vitesse, comme dans les expériences de pompage optique "classique" (26-b).

Approximation séculaire. Beaucoup des fréquences  $\Omega_n$  que nous avons considérées sont hors résonance, c'est-à-dire que, au dénominateur de (55),  $\Omega - \Omega_n$  est très grand (devant les  $\Gamma$ ) :  $f(v, \Omega_n)$  est alors très petit. En règle générale, nous négligerons tous les termes pour lesquels  $\Omega - \Omega_n$  est de l'ordre des fréquences optiques. Donc  $\rho_a$  et  $\rho_b$  auront uniquement des fréquences d'oscillation faibles de l'ordre des fréquences de battement entre modes,  $\omega_v - \omega_\mu$ . Pour  $\rho_{ab}$  nous garderons uniquement les fréquences optiques positives  $\omega_v$  de l'ordre de sa fréquence propre (en champ nul)  $\omega$ . Pour  $\rho_{ba}$  nous ne garderons que les fréquences optiques négatives ( $\sim -\omega$ ).

### 5) Calcul formel de la solution linéaire

Nous allons garder ici les expressions les plus générales pour les différents ordres de  $\rho(v, r, t)$ .

#### a) Ordre (1)

Nous utilisons l'équation (45-c) dans laquelle nous avons posé :

$$\begin{aligned} \omega_a - \omega_b &\approx 0 \\ \frac{\omega_a + \omega_b}{2} &= \omega_z \quad (\text{si } J_a \text{ ou } J_b = 0 : \omega_z = \omega_b \text{ ou } \omega_a) \end{aligned} \quad (56)$$

Le terme source de l'équation (45-c) du 1er ordre s'écrit :

$$\begin{aligned} C_{Q_1}^{k_1}(v, r, t) &= i \sum_{\substack{k_0 Q_0 \\ q_1}} (-)^{J_a + J_b + Q_0} \frac{1}{\sqrt{2k_0+1} \sqrt{2k_1+1}} P_{ab} E_{-q_1} \begin{Bmatrix} k_0 & 1 & k_1 \\ Q_0 & q_1 & -Q_1 \end{Bmatrix} \left[ \begin{Bmatrix} (0) & k_0 \\ b \rho_{Q_0} \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k_0 & 1 & k_1 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} + (-)^{k_1+k_0} \begin{Bmatrix} (0) & k_0 \\ a \rho_{Q_0} \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k_0 & 1 & k_1 \\ J_b & J_a & J_a \end{Bmatrix} \right] \\ &= -i W_M(v) P_{ab} \sum_{\substack{k_0 Q_0 \\ q_1 v}} (-)^{Q_0} \left[ \mathcal{E}_{-q_1}^v e^{-i(\omega_v t - k_v r)} + (-)^{q_1} \mathcal{E}_{q_1}^{v*} e^{i(\omega_v t - k_v r)} \right] \begin{Bmatrix} k_0 & 1 & k_1 \\ Q_0 & q_1 & -Q_1 \end{Bmatrix} n(k_0, Q_0, k_1) \end{aligned} \quad (57)$$

On a posé, en utilisant (48-b) :

$$n(k_0, Q_0, k_1) = (-)^{J_a + J_b + 1} \frac{1}{\sqrt{2k_0+1} \sqrt{2k_1+1}} \left[ \begin{Bmatrix} k_0 & 1 & k_1 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} \frac{b \lambda_{Q_0}^{k_0}}{\Gamma_b(k_0) + i Q_0 \omega_b} + (-)^{k_0+k_1} \begin{Bmatrix} k_0 & 1 & k_1 \\ J_b & J_a & J_a \end{Bmatrix} \frac{a \lambda_{Q_0}^{k_0}}{\Gamma_a(k_0) + i Q_0 \omega_a} \right] \quad (58-a)$$

Les coefficients numériques de (57) ont été choisis de façon que :

$$n = n(0, 0, 1) = \frac{1}{\sqrt{2J_b+1}} \frac{b \lambda_0^0}{\Gamma_b(0)} - \frac{1}{\sqrt{2J_a+1}} \frac{a \lambda_0^0}{\Gamma_a(0)} \quad (58-b)$$

soit "l'inversion de population", c'est-à-dire la différence entre la population moyenne d'un sous-niveau Zeeman  $M_b$ , et la population moyenne d'un sous-niveau  $M_a$ . Lorsque la matrice d'excitation est isotrope, ce

terme est seul différent de zéro : dans ce cas, quelle que soit la polarisation de laser, le milieu est amplificateur si  $n > 0$  et absorbant si  $n < 0$ .

Dans le terme source (57), seuls les termes en  $e^{i\omega_v t}$  sont résonnants, l'approximation séculaire nous permet de négliger les autres. En utilisant (55) et (54), on obtient :

$${}_{ab}^{(1)}\rho_{Q_1}^{k_1}(v, r, t) = -iP_{ab} \sum_{k_0 Q_0} \sum_{q_1 v} (-)^{Q_1} \frac{\begin{pmatrix} k_0 & 1 & k_1 \\ Q_0 & q_1 & -Q_1 \end{pmatrix} n(k_0, Q_0, k_1) W_M(v) \mathcal{E}_{q_1}^{v*} e^{i(\omega_v t - k_v r)}}{[G_{ab}(k_1) - i(\omega - Q_1 \omega_Z - \omega_v + k_v v)] [1 - g_{ab}(k_1) W(\omega - Q_1 \omega_Z - \omega_v + iG_{ab}(k_1))]} \quad (59)$$

$${}_{ab}^{(1)}\bar{\rho}_{Q_1}^{k_1}(r, t) = -iP_{ab} \sum_{k_0 Q_0} \sum_{q_1 v} \frac{(-)^{Q_1} \begin{pmatrix} k_0 & 1 & k_1 \\ Q_0 & q_1 & -Q_1 \end{pmatrix} n(k_0, Q_0, k_1) W(\omega - Q_1 \omega_Z - \omega_v + iG_{ab}(k_1))}{1 - g_{ab}(k_1) W(\omega - Q_1 \omega_Z - \omega_v + iG_{ab}(k_1))} \mathcal{E}_{q_1}^{v*} e^{i(\omega_v t - k_v r)} \quad (60)$$

(59) s'écrit plus simplement que l'expression (55) car le terme source dépend de la vitesse uniquement par le facteur  $W_M(v)$ . La fonction  $W$  figurant dans (59) et (60) est définie ci-dessous.

b) Notations

- La fonction  $W$  figurant à l'ordre 1 est définie par :

$$W(\Omega + i\Gamma) = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{W_M(v) dv}{\Gamma - i(\Omega + kv)} = \frac{1}{u \sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-v^2/u^2} dv}{\Gamma - i(\Omega + kv)} \quad (61-a)$$

$$= \frac{-i}{\Delta v \sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{e^{-x^2} dx}{x - \frac{\Omega + i\Gamma}{\Delta v}} = -\frac{i}{\Delta v} Z \left( \frac{\Omega}{\Delta v} + i \frac{\Gamma}{\Delta v} \right)$$

On a posé :  $x = -v/u$  et

$\Delta v = ku = k \sqrt{2RT/M} =$  demi-largeur Doppler de la raie (à  $1/e$ ).

$Z$  est la fonction de dispersion des plasmas, ses valeurs sont tabulées (FREED et CONTE (56)).

A l'appendice F, nous donnerons un certain nombre de ses propriétés. Rappelons que sa partie imaginaire (partie réelle de  $W$ ) n'est autre que le profil de Voigt des raies optiques, et que l'on a la relation de symétrie :

$$W(\Omega + i\Gamma) = W^*(-\Omega + i\Gamma)$$

Dans (59) et (60),  $G_{ab}(k)$  est complexe, il faut donc écrire cette relation de symétrie sous la forme :

$$W(\Omega + iG_{ab}) = W^*(-\Omega + iG_{ab}^*) = W^*(-\Omega + iG_{ba}) \quad (61-b)$$

- A partir de maintenant, nous poserons :

$${}^{(1)}\rho_{ab}(\nu, r, t) = \sum_{\nu} {}^{(1)}\rho_{ab}(\nu, \nu) e^{i(\omega_{\nu} t - k_{\nu} r)} \quad (62-a)$$

$${}^{(2)}\rho_{\alpha\beta}(\nu, r, t) = \sum_{\mu, \nu} {}^{(2)}\rho_{\alpha\beta}(\nu, \nu-\mu) e^{i[(\omega_{\nu} - \omega_{\mu})t - (k_{\nu} - k_{\mu})r]} \quad (62-b)$$

Rappelons que l'approximation séculaire entraîne :  ${}_{ab}\rho(\nu, -\nu) = {}_{ba}\rho(\nu, \nu) = 0$ . Pour les ordres supérieurs, nous utiliserons des notations équivalentes sans prendre la peine de les redéfinir.

• Pour simplifier l'écriture, nous adopterons la convention suivante dans les intermédiaires du calcul : lorsque les lettres grecques  $\nu, \mu, \lambda \dots$  définissant les modes figureront dans des expressions algébriques (autrement qu'en indice), elles signifieront :

$$\nu = \omega_{\nu} - k_{\nu} \nu ; \quad \nu - \mu = \omega_{\nu} - \omega_{\mu} - (k_{\nu} - k_{\mu}) \nu , \text{ etc...} \quad (63)$$

• Enfin, nous conviendrons d'appeler  $k_n$  et  $Q_n$  les indices caractérisant les composantes de la matrice densité à l'ordre  $n$ ,  ${}^{(n)}\rho_{\alpha\beta}$ , dans la base  ${}_{\alpha\beta}T_Q^k$ . Ceci sera très utile, à chaque ordre de perturbation, pour distinguer la contribution des ordres de perturbation précédents. Les indices  $q_i$  caractérisent les composantes du champ électrique laser intervenant à chaque ordre (en raison de permutations d'indices nécessaires à la simplification des expressions, l'indice  $i$  ne suit pas forcément la progression des ordres de perturbation).

c) Ordre 2 : le niveau supérieur b

Dans l'équation (45-b), le terme source à la fréquence  $\omega_{\nu} - \omega_{\mu}$  est donné par :

$$B_{Q_2}^{k_2}(\nu, \nu-\mu) = \quad (64)$$

$$= i \sum_{\substack{k_1 Q_1 \\ q_2}} (-)^{2J_a + Q_1} \frac{1}{\sqrt{2k_1+1}} \frac{1}{\sqrt{2k_2+1}} \begin{pmatrix} k_1 & l & k_2 \\ Q_1 & q_2 & -Q_2 \end{pmatrix} \begin{Bmatrix} k_1 & l & k_2 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix} \left[ P_{ba} {}^{(1)}\rho_{ab}^{k_1}(\nu, \nu) \mathcal{E}_{-q_2}^{\mu} + (-)^{k_1+k_2+q_2} P_{ab} {}^{(1)}\rho_{ba}^{k_1}(\nu, -\mu) \mathcal{E}_{q_2}^{\nu*} \right]$$

En utilisant l'expression (59) de  ${}^{(1)}\rho_{ab}^{k_1}$  et les relations déduites de l'hermiticité de  $\rho$  et de  $\Lambda$  :

$${}_{ba}\rho_Q^k(\nu, \Omega) = (-)^{J_a - J_b + Q} {}_{ab}\rho_{-Q}^{k*}(\nu, -\Omega) \quad (65)$$

$$n^*(k_0, Q_0, k_1) = (-)^{Q_0} n(k_0, -Q_0, k_1) \quad (66)$$

On obtient :

$$B_{Q_2}^{k_2}(\nu, \nu-\mu) = |P_{ab}|^2 \sum_{\substack{k_0 Q_0 k_1 \\ q_1 q_2}} \mathcal{E}_{q_1}^{\nu*} \mathcal{E}_{-q_2}^{\mu} n(k_0, Q_0, k_1) \begin{Bmatrix} k_1 & l & k_2 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix} \left[ \begin{array}{c|c|c} k_0 & \nu & \mu \\ \hline Q_0 & q_1 & q_2 \\ \hline & k_1 & \end{array} \right]_{Q_2}^{k_2} \quad (67)$$

avec :

$$\begin{aligned} \left[ \begin{matrix} k_0 & \nu & \mu \\ Q_0 & q_1 & q_2 \end{matrix} \middle| \begin{matrix} k_1 \\ k_2 \end{matrix} \right]_{Q_2}^{k_2} &= (-)^{J_a+J_b} \sqrt{2k_1+1} \sqrt{2k_2+1} W_M(\nu) \sum_{Q_1} \left[ \frac{\begin{pmatrix} k_0 & 1 & k_1 \\ Q_0 & q_1 & -Q_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ Q_1 & q_2 & -Q_2 \end{pmatrix}}{[G_{ab}(k_1) - i(\omega - Q_1 \omega_Z - \nu)] [1 - g_{ab}(k_1) W(\omega - Q_1 \omega_Z - \omega_\nu + iG_{ab}(k_1))]} \right. \\ &+ \left. \frac{(-)^{k_0+k_2+Q_0+Q_2} \begin{pmatrix} k_0 & 1 & k_1 \\ Q_0 & q_2 & -Q_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ Q_1 & q_1 & -Q_2 \end{pmatrix}}{[G_{ab}^*(k_1) + i(\omega + Q_1 \omega_Z - \mu)] [1 - g_{ab}^*(k_1) W^*(\omega + Q_1 \omega_Z - \omega_\mu + iG_{ab}(k_1))]} \right] \end{aligned} \quad (68)$$

Rappelons que  $\nu$  et  $\mu$  dépendent de  $v$  suivant (63). Le second terme de cette expression a été obtenu en échangeant les indices de sommation :  $q_2 \rightarrow q_1$ ;  $q_1 \rightarrow -q_2$ ;  $Q_0 \rightarrow -Q_0$  et en appliquant la règle de symétrie

$$\begin{pmatrix} k_0 & 1 & k_1 \\ -Q_0 & -q_2 & Q_1 \end{pmatrix} = (-)^{k_0+k_1+1} \begin{pmatrix} k_0 & 1 & k_1 \\ Q_0 & q_2 & -Q_1 \end{pmatrix}.$$

On obtient alors en utilisant (55) :

$$(2) \rho_{Q_2}^{k_2}(\nu, \nu - \mu) = |P_{ab}|^2 \sum_{k_0 Q_0 k_1} \frac{n(k_0, Q_0, k_1) \mathcal{E}_{q_1}^{\nu*} \mathcal{E}_{-q_2}^{\mu}}{\Gamma'_b(k_2) + i[\omega_\nu - \omega_\mu + Q_2 \omega_b - (k_\nu - k_\mu) \nu]} \left\{ \begin{matrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_b & J_b & J_a \end{matrix} \right\} \rho_{Q_2}^{k_2}(\nu, \nu - \mu) \quad (69)$$

$$\rho_{Q_2}^{k_2}(\nu, \nu - \mu) = \left[ \begin{matrix} k_0 & \nu & \mu \\ Q_0 & q_1 & q_2 \end{matrix} \middle| \begin{matrix} k_1 \\ k_2 \end{matrix} \right]_{Q_2}^{k_2} + \frac{\gamma'_b(k_2) W_M(\nu) \int \frac{\left[ \begin{matrix} k_0 & \nu & \mu \\ Q_0 & q_1 & q_2 \end{matrix} \middle| \begin{matrix} k_1 \\ k_2 \end{matrix} \right]_{Q_2}^{k_2} dv'}{\Gamma'_b(k_2) + i[\omega_\nu - \omega_\mu + Q_2 \omega_b - (k_\nu - k_\mu) \nu]}}{1 - \gamma'_b(k_2) \int \frac{W_M(\nu') dv'}{\Gamma'_b(k_2) + i[\omega_\nu - \omega_\mu + Q_2 \omega_b - (k_\nu - k_\mu) \nu]}} \quad (70)$$

La matrice densité sommée sur les vitesses est donc :

$$(2) \rho_{Q_2}^{k_2}(r, t) = |P_{ab}|^2 \sum_{k_0 Q_0 k_1} \frac{n(k_0, Q_0, k_1) \left\{ \begin{matrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_b & J_b & J_a \end{matrix} \right\} e^{i[(\omega_\nu - \omega_\mu)t - (k_\nu - k_\mu)r]}}{1 - \gamma'_b(k_2) \int \frac{W_M(\nu) dv}{\Gamma'_b(k_2) + i(\omega_\nu - \omega_\mu + Q_2 \omega_b - (k_\nu - k_\mu) \nu)}} \int \frac{\left[ \begin{matrix} k_0 & \nu & \mu \\ Q_0 & q_1 & q_2 \end{matrix} \middle| \begin{matrix} k_1 \\ k_2 \end{matrix} \right]_{Q_2}^{k_2} dv}{\Gamma'_b(k_2) + i(\omega_\nu - \omega_\mu + Q_2 \omega_b - (k_\nu - k_\mu) \nu)} \quad (71)$$

d) Diagrammes mnémotechniques

Nous allons montrer qu'il est possible de visualiser les termes intervenant au 2e ordre à l'aide de diagrammes qui pourront, par la suite, être généralisés à tous les ordres. Il est même possible d'établir des règles permettant de construire l'expression algébrique complète correspondant à chaque diagramme, cependant nous ne le ferons pas ici car, au lieu d'aider la compréhension, la présentation de telles règles alourdirait encore l'exposé.

Si l'on part d'atomes se trouvant à l'ordre zéro dans le niveau b (par exemple), on voit que l'on peut faire agir la perturbation R à gauche de  $\rho_b^{(0)}$  pour obtenir  $\rho_{ab}^{(1)}$  (terme  $\rho_{ab}^{(0)R}$ ) du commu-

tateur de (44)) ou à droite pour obtenir  ${}_{ba}^{(1)}\rho$  (terme  ${}_{ba}^{(0)}\rho$  R du commutateur). Partant de  ${}_{ab}^{(1)}\rho$  on peut atteindre  ${}_{b|}^{(2)}\rho$  en faisant agir une seconde fois la perturbation à gauche (terme  ${}_{ba}^R {}_{ab}^{(1)}\rho$ ) ou bien on peut partir de  ${}_{ba}^{(1)}\rho$  et faire agir la perturbation une seconde fois à droite (terme  ${}_{ba}^{(1)}\rho {}_{ab}^R$ ). Les deux chemins, pour passer de  ${}_{b|}^{(0)}\rho$  à  ${}_{b|}^{(2)}\rho$ , correspondent aux deux parties du terme source de (45-b) ou de (64). Ils peuvent être représentés par deux diagrammes différents (figure II-3).

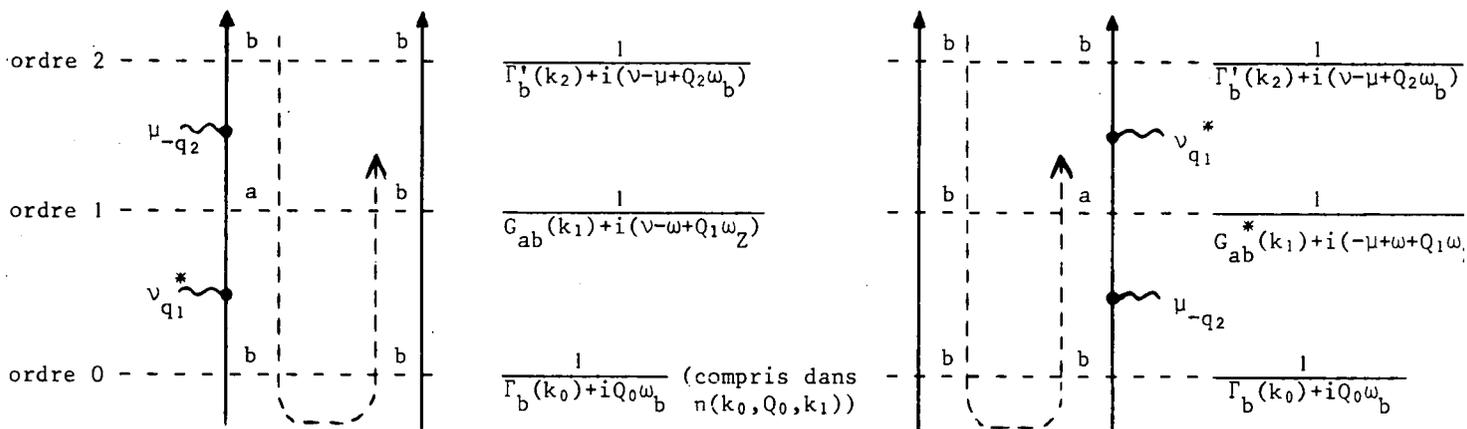


FIGURE II-3,a

FIGURE II-3,b

Un diagramme est constitué de deux traits verticaux représentant l'état à chaque ordre de perturbation des indices  $\alpha$  (trait de gauche) et  $\beta$  (trait de droite) de  ${}_{\alpha\beta}^{(n)}\rho$ . L'évolution se lit du bas vers le haut. Le passage d'un ordre au suivant se fait par une interaction avec un mode du laser, soit sur le trait de droite, soit sur le trait de gauche. Pour chaque interaction, il faut sommer sur tous les modes  $\nu$ , sur toutes les polarisations  $q_n$  et sur tous les indices  $k_n, Q_n$  caractérisant la décomposition de  ${}_{\alpha\beta}^{(n)}\rho$  sur la base des  $\alpha\beta^T Q^k$ .

Lorsque l'on passe par  ${}_{ab}^{(1)}\rho$  (chemin de la figure II-3,a), l'approximation séculaire impose que la première interaction se fasse avec la partie de fréquence positive du mode  $(\mathcal{E}^{\nu*} e^{i(\omega_\nu t - k_\nu r)})$ , nous noterons l'interaction  $\nu^*$ , et la seconde interaction avec la partie de fréquence négative  $(\mathcal{E}^\mu e^{-i(\omega_\mu t - k_\mu r)})$  que nous noterons  $\mu$ . Avec le chemin (II-3,b), c'est-à-dire en passant par  ${}_{ba}^{(1)}\rho$ , il faut utiliser en premier une fréquence négative et en second une fréquence positive. Nous les noterons respectivement  $\mu$  et  $\nu^*$  pour obtenir la même fréquence à l'ordre (2)  $(\omega_\nu - \omega_\mu)$ , avec les deux diagrammes.

L'approximation séculaire permet d'établir une règle générale (valable à tous les ordres) : il faut affecter le mode d'une étoile (fréquence positive) chaque fois que l'on passe de a à b en descendant suivant la branche de gauche, ou en montant suivant la branche de droite (sens de la flèche pointillée). Au contraire, on ne met pas d'étoile (fréquence négative) quand on passe de b à a en suivant le même sens de progression.

Enfin, à chaque ordre de perturbation, l'évolution du système entre deux interactions est représentée par un facteur résonnant qui tient compte du taux de relaxation de la grandeur tensorielle et de l'écart entre la somme (algébrique) des fréquences de tous les modes ayant interagi jusque là, et la fréquence de résonance de l'observable considérée. A l'ordre n le facteur résonnant pour  ${}_{\alpha\beta}^{(n)}\rho_{\alpha\beta}^{k_n}$  est :  $\left[ G_{\alpha\beta}(k_n) + i \left( \sum_{j=1}^n \nu_j \right) - (W_\beta - W_\alpha) + Q_n \omega'_Z \right]^{-1}$  (où  $\omega'_Z = \omega_a, \omega_b$  ou  $\omega_Z$  suivant le cas). Nous n'allons pas la présenter en incluant dans les diagrammes l'effet de la diffusion de la vitesse : la formule (55) et la discussion qui suit permettent de trouver la forme des termes en présence de ce phénomène.

Nous avons discuté la construction de  ${}_{b|}^{(2)}\rho$  à partir de  ${}_{b|}^{(0)}\rho$ , mais il est également possible de partir de  ${}_{a|}^{(0)}\rho$ . On obtient alors les diagrammes de la figure II-4. L'ensemble des diagrammes II-3 et II-4 représente l'ensemble des termes constituant le crochet  $\left[ \left[ \right]_{Q_2}^{k_2} \right]$  (68) figurant dans  ${}_{b|}^{(2)}\rho_{Q_2}^{k_2}$  (71) (certains facteurs ont été sortis du crochet).

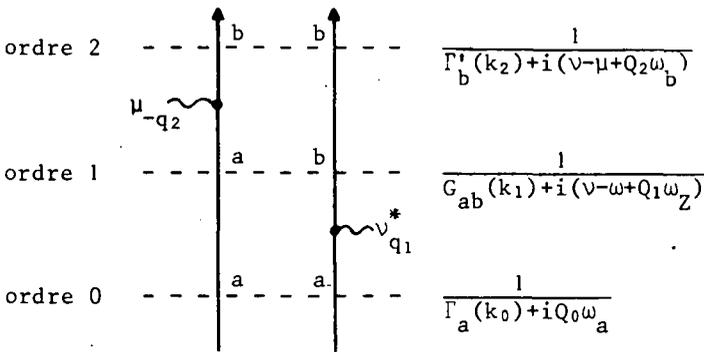


FIGURE II-4, a

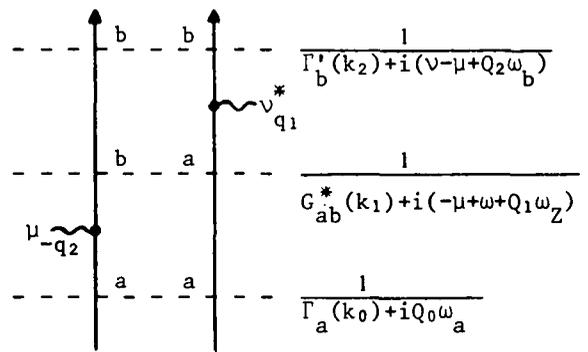


FIGURE II-4, b

e) Le niveau inférieur a

L'équation (45-a) comporte deux termes sources : le second terme (effet direct du laser) est analogue au terme source de (45-b). En le mettant sous la forme (64), on voit aisément qu'il peut s'écrire :

$$A_{Q_2}^{k_2}(v, v-\mu) = (-)^{k_2+k_1} \frac{\begin{Bmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_a & J_a & J_b \end{Bmatrix}}{\begin{Bmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix}} B_{Q_2}^{k_2}(v, v-\mu) \quad (72)$$

Le premier terme est le terme de transfert, il s'écrit :

$$\Theta(b, a, k_2) {}_{b|}^{(2)}\rho_{Q_2}^{k_2}(v, v-\mu) \quad (73)$$

Le terme source total peut donc s'écrire :

$$A_{Q_2}^{k_2}(v, v-\mu) = |P_{ab}|^2 \sum_{\substack{k_0 Q_0 k_1 \\ q_1 q_2}} \mathcal{E}_{q_1}^{v*} \mathcal{E}_{-q_2}^{\mu} n(k_0, Q_0, k_1) \begin{Bmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_a & J_a & J_b \end{Bmatrix} (-)^{k_1+k_2} \left\{ \begin{Bmatrix} k_0 & v & \mu \\ Q_0 & q_1 & q_2 \end{Bmatrix} \right\}_{Q_2}^{k_2} - \frac{\gamma_{ba} \mathcal{A}(b, a, k_1, k_2) b_{Q_2}^{k_2}}{\Gamma'_b(k_2) + i[v-\mu+Q_2\omega_b]} \quad (74)$$

Le coefficient de transfert  $\mathcal{A}$  est défini par (l'expression de  $\Theta$  est donnée en (19)) :

$$\mathcal{A}(b, a, k_1, k_2) = (-)^{k_1+k_2} \frac{\begin{Bmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix}}{\begin{Bmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_a & J_a & J_b \end{Bmatrix}} \frac{\Theta(b, a, k_2)}{\gamma_{ba}} = (-)^{J_a+J_b+k_1} \begin{Bmatrix} k_2 & J_b & J_b \\ 1 & J_a & J_a \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix} \quad (75)$$

Les valeurs de  $\mathcal{A}$  seront tabulées au chapitre IV (IV-26,b). Cette notation a été choisie de façon à faire apparaître séparément la probabilité de transition  $\gamma_{ba}$  (proportionnelle à  $|P_{ab}|^2$ ) et les coefficients angulaires rassemblés dans  $\mathcal{A}$ .

A l'aide du terme source (74), on obtient la matrice densité du niveau inférieur :

$${}^{(2)}\rho_{aQ}^k(v, v-\mu) = |P_{ab}|^2 \sum_{\substack{k_0 Q_0 k_1 \\ q_1 q_2}} (-)^{k_1+k_2} \frac{n(k_0, Q_0, k_1) \mathcal{E}_{q_1}^{v*} \mathcal{E}_{-q_2}^{\mu}}{\Gamma'_a(k_2) + i(v-\mu+Q_2\omega_a)} \begin{Bmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_a & J_a & J_b \end{Bmatrix} a_{Q_2}^{k_2}(v, v-\mu) \quad (76)$$

$$a_{Q_2}^{k_2}(v, v-\mu) = \left[ \begin{Bmatrix} k_0 & v & \mu \\ Q_0 & q_1 & q_2 \end{Bmatrix} \right]_{Q_2}^{k_2} - \frac{\gamma_{ba} \mathcal{A}(b, a, k_1, k_2) b_{Q_2}^{k_2}(v, v-\mu)}{\Gamma'_b(k_2) + i(v-\mu+Q_2\omega_b)} \quad (77)$$

$$+ \frac{\gamma'_a(k_2) W_M(v) \int \left\{ \left[ \begin{Bmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ 1 & 1 & 1 \end{Bmatrix} \right]_{Q_2} - \frac{\gamma_{ba} \mathcal{A}(b, a, k_1, k_2) b_{Q_2}^{k_2}}{\Gamma'_b(k_2) + i(v-\mu+Q_2\omega_b)} \right\} \frac{dv'}{\Gamma'_a(k_2) + i(v-\mu+Q_2\omega_a)}}{1 - \gamma'_a(k_2) \int \frac{W_M(v') dv'}{\Gamma'_a(k_2) + i(v-\mu+Q_2\omega_a)}}$$

Après intégration sur les vitesses, on obtient :

$${}^{(2)}\rho_{aQ_2}^{k_2}(r, t) = |P_{ab}|^2 \sum_{\substack{k_0 Q_0 k_1 \\ v \mu q_1 q_2}} (-)^{k_1+k_2} n(k_0, Q_0, k_1) \begin{Bmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_a & J_a & J_b \end{Bmatrix} \mathcal{E}_{q_1}^{v*} \mathcal{E}_{-q_2}^{\mu} e^{i[(\omega_v - \omega_\mu)t - (k_v - k_\mu)r]} \quad (78)$$

$$\frac{\int \left\{ \left[ \begin{Bmatrix} k_0 & v & \mu \\ Q_0 & q_1 & q_2 \end{Bmatrix} \right]_{Q_2}^{k_2} - \frac{\gamma_{ba} \mathcal{A}(b, a, k_1, k_2) b_{Q_2}^{k_2}(v, v-\mu)}{\Gamma'_b(k_2) + i[\omega_v - \omega_\mu + Q_2\omega_b - (k_v - k_\mu)v]} \right\} \frac{dv}{\Gamma'_a(k_2) + i[\omega_v - \omega_\mu + Q_2\omega_a - (k_v - k_\mu)v]}}{1 - \gamma'_a(k_2) \int \frac{W_M(v) dv}{\Gamma'_a(k_2) + i[\omega_v - \omega_\mu + Q_2\omega_a - (k_v - k_\mu)v]}}$$

Ces formules sont analogues aux formules (69), (70) et (71) pour le niveau b. La principale différence provient des termes de transfert par émission spontanée. On peut facilement comprendre la forme de ces termes dans le cas simple où l'on peut négliger les phénomènes de changement de vitesse ( $\gamma'_b = \gamma'_a = 0$ ). En effet  $b_{Q_2}^{k_2}$  est alors égal à  $\left[ \begin{array}{c} | \\ | \end{array} \right]_{Q_2}^{k_2}$  qui se met en facteur, ce qui permet d'exprimer le transfert sous la forme d'un simple facteur correctif :

$$\left\{ 1 - \frac{\gamma_{ba} \mathcal{A}(b, a, k_1, k_2)}{\Gamma_b(k_2) + i(\nu - \mu + Q_2 \omega_b)} \right\} \quad (78-a)$$

Le dénominateur  $\Gamma_b(k_2) + i(\nu - \mu + Q_2 \omega_b)$  exprime l'évolution des atomes dans le niveau supérieur b avant qu'ils ne descendent au niveau a,  $\gamma_{ba}$  exprime la probabilité de cette transition et le dénominateur  $\Gamma_a(k_2) + i(\nu - \mu + Q_2 \omega_a)$  de (76) exprime l'évolution des atomes une fois qu'ils sont en a. Lorsque les processus de changement de vitesse existent, les termes de transfert sont compliqués, car il faut tenir compte des changements de vitesse possibles dans le niveau b puis dans le niveau a.

Remarques sur le second ordre

Nous étudierons très en détail les résultats du second ordre au chapitre IV. Faisons cependant, dès maintenant, quelques remarques :

- La matrice densité de chacun des deux niveaux est modulée à toutes les fréquences  $\omega_\nu - \omega_\mu$ , c'est-à-dire aux fréquences de battements des modes pris deux à deux.
- Dans les expressions (71) et (78) de  $\overline{b}_\rho^{(2)}$  et  $\overline{a}_\rho^{(2)}$ , on a isolé quatre types de facteurs :
  - $|P_{ab}|^2$  qui caractérise la probabilité de transition de la raie laser (force d'oscillateur).
  - $\mathcal{E}_{q_1}^{\nu} \mathcal{E}_{-q_2}^{\mu}$  caractérise l'effet de l'amplitude et de la polarisation du faisceau laser, ainsi que l'effet de la phase relative des modes.
  - $n(k_0, Q_0, k_1)$  contient l'information sur l'état initial du système atomique.
  - Les autres facteurs caractérisent la possibilité d'interaction laser-atomes en présence d'un champ magnétique, tant en ce qui concerne la polarisation (coefficient 3J et 6J) que la fréquence (dénominateurs exprimant les résonances). Ce dernier facteur tient également compte de toutes les formes de relaxation.

f) Cas d'une onde progressive

Lorsque le faisceau laser est une onde progressive (cellule hors de la cavité), une importante simplification peut être apportée. Dans ce cas, tous les  $k_\nu$  sont positifs et l'on peut négliger les termes  $(k_\nu - k_\mu) v$ . En effet,  $\left| \frac{k_\nu - k_\mu}{k_\nu} \right| \approx \left| \frac{\omega_\nu - \omega_\mu}{\omega_\nu} \right| \sim 10^{-7}$  pour un laser à gaz d'environ deux mètres de long. Donc,  $(k_\nu - k_\mu)v \sim 10^{-7} k_\nu v = 10^{-7} \Delta v$ ; comme la largeur Doppler est d'environ  $10^9$  Hz :  $(k_\nu - k_\mu)v$  est de l'ordre de 100 Hz, ce qui est négligeable devant  $\omega_\nu - \omega_\mu$  ( $\sim 10^8$  Hz). Ceci signifie que l'on peut négliger la variation d'effet Doppler d'un mode à l'autre. Il est bien évident que cette approximation n'est pas possible dans le cas d'une onde stationnaire puisque les effets

Doppler de deux ondes se propageant en sens inverse sont opposés.

Avec cette approximation, les formules (70), (71), (77) et (78) se simplifient (suivant la méthode utilisée pour obtenir (54-a) et (55-a) :

$$b_{Q_2}^{k_2}(v, v-\mu) = \left[ \begin{array}{c|c|c} k_0 & 1 & k_1 \\ \hline Q_0 & q_1 & q_2 \end{array} \right]_{Q_2}^{k_2} + \frac{\gamma_b'(k_2) W_M(v) \int \left[ \begin{array}{c|c|c} k_1 & 1 & k_2 \\ \hline Q_1 & q_1 & Q_2 \end{array} \right]_{Q_2}^{k_2} dv'}{\Gamma_b'(k_2) - \gamma_b'(k_2) + i[\omega_v - \omega_\mu + Q_2 \omega_b]} \quad (79)$$

$$(2) \frac{b_{Q_2}^{k_2}(r, t)}{P_{ab}} = |P_{ab}|^2 \sum_{\substack{k_0 Q_0 k_1 \\ q_1 q_2 \nu \mu}} n(k_0, Q_0, k_1) \left\{ \begin{array}{c|c|c} k_1 & 1 & k_2 \\ \hline J_b & J_b & J_a \end{array} \right\} \mathcal{Z}_{q_1}^{\nu*} \mathcal{Z}_{-q_2}^{\mu} e^{i[(\omega_v - \omega_\mu)t - (k_v - k_\mu)r]} \int \left[ \begin{array}{c|c|c} k_1 & 1 & k_2 \\ \hline Q_1 & q_1 & Q_2 \end{array} \right]_{Q_2}^{k_2} dv \quad (80)$$

$$a_{Q_2}^{k_2}(v, v-\mu) = \left[ \begin{array}{c|c|c} k_0 & 1 & k_1 \\ \hline Q_0 & q_1 & Q_2 \end{array} \right]_{Q_2}^{k_2} - \frac{\gamma_{ba} \mathcal{A}(b, a, k_1, k_2) b_{Q_2}^{k_2}(v, v-\mu)}{\Gamma_b'(k_2) + i(\omega_v - \omega_\mu + Q_2 \omega_b)} \quad (81)$$

$$+ \frac{\gamma_a'(k_2) W_M(v)}{\Gamma_a'(k_2) - \gamma_a'(k_2) + i[\omega_v - \omega_\mu + Q_2 \omega_a]} \left\{ 1 - \frac{\gamma_{ba} \mathcal{A}(b, a, k_1, k_2)}{\Gamma_b'(k_2) - \gamma_b'(k_2) + i[\omega_v - \omega_\mu + Q_2 \omega_b]} \right\} \int \left[ \begin{array}{c|c|c} k_1 & 1 & k_2 \\ \hline Q_1 & q_1 & Q_2 \end{array} \right]_{Q_2}^{k_2} dv$$

$$(2) \frac{a_{Q_2}^{k_2}(r, t)}{P_{ab}} = |P_{ab}|^2 \sum_{\substack{k_0 Q_0 Q_1 \\ q_1 q_2 \nu \mu}} (-)^{k_1+k_2} n(k_0, Q_0, k_1) \left\{ \begin{array}{c|c|c} k_1 & 1 & k_2 \\ \hline J_a & J_a & J_b \end{array} \right\} \mathcal{Z}_{q_1}^{\nu*} \mathcal{Z}_{-q_2}^{\mu} e^{i[(\omega_v - \omega_\mu)t - (k_v - k_\mu)r]} \int \left[ \begin{array}{c|c|c} k_1 & 1 & k_2 \\ \hline Q_1 & q_1 & Q_2 \end{array} \right]_{Q_2}^{k_2} dv \quad (82)$$

$$\left[ 1 - \frac{\gamma_{ba} \mathcal{A}(b, a, k_1, k_2)}{\Gamma_b'(k_2) - \gamma_b'(k_2) + i(\omega_v - \omega_\mu + Q_2 \omega_b)} \right] \int \left[ \begin{array}{c|c|c} k_1 & 1 & k_2 \\ \hline Q_1 & q_1 & Q_2 \end{array} \right]_{Q_2}^{k_2} dv$$

En utilisant l'expression (68), on trouve :

$$\int \left[ \begin{array}{c|c|c} k_0 & 1 & k_1 \\ \hline Q_0 & q_1 & Q_2 \end{array} \right]_{Q_2}^{k_2} dv = (-)^{J_a+J_b} \frac{1}{\sqrt{2k_1+1} \sqrt{2k_2+1}} \sum_{Q_1} \left[ \frac{\begin{pmatrix} k_0 & 1 & k_1 \\ Q_0 & q_1 & -Q_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ Q_1 & q_1 & -Q_2 \end{pmatrix} W(\omega - Q_1 \omega_Z - \omega_\nu + iG_{ab}(k_1))}{1 - g_{ab}(k_1) W(\omega - Q_1 \omega_Z - \omega_\nu + iG_{ab}(k_1))} \right. \quad (83)$$

$$\left. + \frac{(-)^{k_0+k_2+Q_0+Q_2} \begin{pmatrix} k_0 & 1 & k_1 \\ Q_0 & q_2 & -Q_1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ Q_1 & q_1 & -Q_2 \end{pmatrix} W^*(\omega + Q_1 \omega_Z - \omega_\mu + iG_{ab}(k_1))}{1 - g_{ab}^*(k_1) W^*(\omega + Q_1 \omega_Z - \omega_\mu + iG_{ab}(k_1))} \right]$$

Dans ce cas, on voit que pour  $(2) \frac{a_{Q_2}^{k_2}}{P_{ab}}$  et  $(2) \frac{b_{Q_2}^{k_2}}{P_{ab}}$  les coefficients de relaxation

effectifs sont  $\Gamma_a(k_2) = \Gamma_a'(k_2) - \gamma_a'(k_2)$  et  $\Gamma_b(k_2) = \Gamma_b'(k_2) - \gamma_b'(k_2)$ , c'est-à-dire les coefficients de relaxation usuels (cf. § B-4, éq. 49) des grandeurs tensorielles  $k_2$ , prises globalement, sans tenir compte des changements de la vitesse des atomes. Ceci se comprend aisément puisque notre méthode d'observation

globale de  $\bar{\rho}$  ne nous permet pas de voir les changements de vitesse survenus après la transition induite par le laser (2e ordre de perturbation = 1 transition sous l'effet du laser). On comprend également que le transfert par émission spontanée s'exprime, dans (82), sous la forme simplifiée (78-a). La diffusion de la vitesse ne peut avoir de l'influence que "pendant" l'interaction avec le laser (de façon plus précise, dans l'intervalle compris entre les deux points d'interaction des diagrammes des figures 3 et 4); c'est pourquoi elle n'apparaît que par la relaxation des cohérences optiques dans le facteur (83).

Lorsque l'onde laser est stationnaire, il faut garder les expressions (70) et (72) de  $b_{Q_2}^{k_2}$  et  $a_{Q_2}^{k_2}$  pour calculer les ordres supérieurs, mais nous montrerons au chapitre IV que les grandeurs expérimentalement intéressantes peuvent encore être déduites des formules simplifiées (80) et (82) de  $(2)_{b\rho}^{k_2}$  et  $(2)_{a\rho}^{k_2}$ .

REMARQUE.

On voit que les expressions (II-80) et (II-82) (onde progressive) sont les solutions stationnaires des équations :

$$\frac{\partial}{\partial t} (2)_{b\rho}^{k_2}(r,t) = -(iQ_2\omega_b + \Gamma_b(k_2)) (2)_{b\rho}^{k_2}(r,t) + \sum_{k_0 Q_0 k_1} n(k_0, Q_0, k_1) \begin{Bmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix} B' \quad (84-a)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (2)_{a\rho}^{k_2}(r,t) = -(iQ_2\omega_a + \Gamma_a(k_2)) (2)_{a\rho}^{k_2}(r,t) + \Theta(b, a, k_2) (2)_{b\rho}^{k_2} + \sum_{k_0 Q_0 k_1} (-)^{k_2+k_1} n(k_0, Q_0, k_1) \begin{Bmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_a & J_a & J_b \end{Bmatrix} B' \quad (84-b)$$

avec

$$B' = |P_{ab}|^2 \sum_{\substack{q_1 q_2 \\ v \mu Q_1}} \mathcal{E}_{q_1}^{v*} \mathcal{E}_{-q_2}^{\mu} e^{i[(\omega_v - \omega_\mu)t - (k_v - k_\mu)r]} \int \left[ \left| \begin{Bmatrix} k_2 \\ J_a \end{Bmatrix} \right| \right]_{Q_2} dv \quad (84-c)$$

Ces équations peuvent d'ailleurs se déduire directement des équations (45-a) et (45-b) par intégration sur les vitesses, à condition de faire la même hypothèse :  $(k_v - k_\mu)v \ll \omega_v - \omega_\mu$ . En effet, dans ces conditions, on voit que  $\dot{\rho} = (\frac{\partial}{\partial t} + v \frac{\partial}{\partial r})\rho$  peut être remplacé par  $\frac{\partial}{\partial t} \rho$ , car  $\rho$  est une somme de termes de la forme  $e^{-i[(\omega_v - \omega_\mu)t - (k_v - k_\mu)r]}$ .

Les équations (84) donnent directement la matrice densité sommée sur les vitesses. Dans le terme source  $B'$  chaque fréquence du laser est pondérée par un facteur  $\int \left[ \left| \begin{Bmatrix} k_2 \\ J_a \end{Bmatrix} \right| \right]_{Q_2} dv$  qui représente l'effet de la forme de raie optique du système atomique (cf. IV-15 et 16 dans le cas d'une excitation isotrope).

Si le laser comprend assez de modes suffisamment rapprochés pour que la distribution de vitesse des atomes excités soit maxwellienne, l'utilisation d'un terme de relaxation isotrope dans les équations (84) est justifiée même si elle ne l'est pas dans les équations (45) (à condition que l'anisotropie provienne uniquement de la symétrie imposée par le pompage optique laser). En effet, l'intégration sur  $v$  avant la résolution des équations permet alors de remplir toutes les conditions requises

pour l'application de (13) (Cf. discussion du § II-A-5-a). Ceci justifie l'utilisation que nous ferons des formules (80) et (82), pour la détermination expérimentale des temps de relaxation.

### 6) Calcul des termes non linéaires

#### a) Ordre 3

Nous utilisons à nouveau l'équation (45-c) en y insérant les résultats de l'ordre (2) (on néglige toujours le couplage entre ordres tensoriels :  $\omega_a - \omega_b \ll \Gamma'_{ab}$ ). Les termes source sont :

$$C_{Q_3}^{k_3}(v, \lambda - \mu + \nu) = i \sum_{\substack{k_2 Q_2 \\ q_3}} (-)^{J_a + J_b + Q_2 + q_3} \frac{1}{\sqrt{2k_2 + 1} \sqrt{2k_3 + 1}} P_{ab} \begin{Bmatrix} k_2 & 1 & k_3 \\ Q_2 & q_3 & -Q_3 \end{Bmatrix} \mathcal{Z}_{q_3}^{\lambda*} \quad (85)$$

$$\left[ \begin{Bmatrix} k_2 & 1 & k_3 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} {}^{(2)}\rho_{Q_2}^{k_2}(v, v - \mu) + (-)^{k_3 + k_2} \begin{Bmatrix} k_2 & 1 & k_3 \\ J_b & J_a & J_a \end{Bmatrix} {}^{(2)}\rho_{Q_2}^{k_2}(v, v - \mu) \right]$$

$$= -i \sum_{k_2 Q_2 q_3} (-)^{Q_3} P_{ab} \mathcal{Z}_{q_3}^{\lambda*} \begin{Bmatrix} k_2 & 1 & k_3 \\ Q_2 & q_3 & -Q_3 \end{Bmatrix} n(k_2, Q_2, k_3; v; v - \mu)$$

Par analogie avec le premier ordre (éq. 58-a), nous avons posé

$$n(k_2, Q_2, k_3; v; v - \mu) = (-)^{J_a + J_b + 1} \frac{1}{\sqrt{2k_2 + 1} \sqrt{2k_3 + 1}} \left[ \begin{Bmatrix} k_2 & 1 & k_3 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} {}^{(2)}\rho_{Q_2}^{k_2}(v, v - \mu) + (-)^{k_3 + k_2} \begin{Bmatrix} k_2 & 1 & k_3 \\ J_b & J_a & J_a \end{Bmatrix} {}^{(2)}\rho_{Q_2}^{k_2}(v, v - \mu) \right] \quad (86-a)$$

$$= (-)^{J_a + J_b + 1} \frac{1}{\sqrt{2k_2 + 1} \sqrt{2k_3 + 1}} |P_{ab}|^2 \sum_{\substack{k_0 Q_0 k_1 \\ q_1 q_2}} n(k_0, Q_0, k_1) \mathcal{Z}_{q_1}^{v*} \mathcal{Z}_{-q_2}^{\mu}$$

$$\left[ \frac{\begin{Bmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k_2 & 1 & k_3 \\ J_a & J_b & J_b \end{Bmatrix} {}^{(2)}\rho_{Q_2}^{k_2}(v, v - \mu)}{\Gamma'_b(k_2) + i [\nu - \mu + Q_2 \omega_b]} + \frac{(-)^{k_3 + k_1} \begin{Bmatrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_a & J_a & J_b \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k_2 & 1 & k_3 \\ J_b & J_a & J_a \end{Bmatrix} {}^{(2)}\rho_{Q_2}^{k_2}(v, v - \mu)}{\Gamma'_a(k_2) + i [\nu - \mu + Q_2 \omega_a]} \right]$$

$n(k_2, Q_2, k_3; v, v - \mu)$  peut être considéré comme une première correction à  $n(k_0, Q_0, k_1) W_M(v)$ , due à l'effet de saturation du laser. Cette notation a été introduite pour simplifier le calcul de l'ordre (4), mais pour mieux faire apparaître les corrections des 3e et 4e ordres comme des fonctions du 3e et du 4e degré par rapport aux champs électriques, nous utiliserons aussi la notation :

$$n(k_2, Q_2, k_3; v, v - \mu) = |P_{ab}|^2 \sum_{\substack{k_0 Q_0 q_1 q_2 \\ k_1}} n(k_0, Q_0, k_1) \mathcal{Z}_{q_1}^{v*} \mathcal{Z}_{-q_2}^{\mu} \left[ \begin{array}{c|c|c} k_0 & \nu & \mu \\ \hline Q_0 & q_1 & q_2 \end{array} \middle| \begin{array}{c|c} k_1 & k_2 \\ \hline Q_2 \end{array} \right]^{k_3} \quad (86-b)$$

Avec le terme source (85), on obtient :

$$(3) \rho_{ab}^{k_3}(v, v-\mu+\lambda) = -i P_{ab} \sum_{k_2 Q_2 Q_3} (-)^{Q_3} \zeta_{q_3}^{\lambda*} \begin{bmatrix} k_2 & 1 & k_3 \\ Q_2 & q_3 & -Q_3 \end{bmatrix} \frac{1}{G_{ab}(k_3) - i(\omega - Q_3 \omega_Z - \nu + \mu - \lambda)} \quad (87)$$

$$\left[ \frac{g_{ab}(k_3) W_M(v) \int \frac{n(k_2, Q_2, k_3; v'; \nu - \mu) dv'}{G_{ab}(k_3) - i(\omega - Q_3 \omega_Z - \nu + \mu - \lambda)}}{1 - g_{ab}(k_3) \int \frac{W_M(v') dv'}{G_{ab}(k_3) - i(\omega - Q_3 \omega_Z - \nu + \mu - \lambda)}} \right]$$

$$(3) \rho_{ab}^{k_3}(r, t) = -i P_{ab} |P_{ab}|^2 \sum_{k_0 k_1 k_2} (-)^{Q_3} n(k_0, Q_0, k_1) \begin{bmatrix} k_2 & 1 & k_3 \\ Q_2 & q_3 & -Q_3 \end{bmatrix} \zeta_{q_1}^{\nu*} \zeta_{-q_2}^{\mu} \zeta_{q_3}^{\lambda*} e^{i[(\omega_\nu - \omega_\mu + \omega_\lambda)t - (k_\nu - k_\mu + k_\lambda)r]}$$

$$\sum_{\nu \mu \lambda Q_0 Q_2} \sum_{q_1 q_2 q_3} \int \frac{\begin{bmatrix} k_0 & \nu & \mu & k_1 & k_2 \\ Q_0 & q_1 & q_2 & Q_2 \end{bmatrix}^{k_3} dv}{G_{ab}(k_3) - i(\omega - Q_3 \omega_Z - \nu + \mu - \lambda)}$$

$$\frac{1}{1 - g_{ab}(k_3)} \int \frac{W_M(v) dv}{G_{ab}(k_3) - i(\omega - Q_3 \omega_Z - \nu + \mu - \lambda)} \quad (88)$$

b) 4e ordre

En utilisant l'expression (87) de  $(3) \rho_{ab}^{k_3}(v, v-\mu+\lambda)$ , on obtient le terme source de l'équation donnant  $(4) \rho_{ab}^{k_4}(v, v-\mu+\lambda-\kappa)$  :

$$B_{Q_4}^{k_4}(v, v-\mu+\lambda-\kappa) = i \sum_{k_3 Q_3 q_4} (-)^{J_a + Q_3} \frac{1}{\sqrt{2k_3+1}} \frac{1}{\sqrt{2k_4+1}} \begin{Bmatrix} k_3 & 1 & k_4 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k_3 & 1 & k_4 \\ Q_3 & q_4 & -Q_4 \end{Bmatrix} \quad (89)$$

$$\left[ P_{ba} (3) \rho_{ab}^{k_3}(v, v-\mu+\lambda) \zeta_{-q_4}^{\kappa} + (-)^{k_3+k_4+q_4} P_{ab} (3) \rho_{ba}^{k_3}(v, v-\mu-\kappa) \zeta_{q_4}^{\lambda*} \right]$$

$$= |P_{ab}|^2 \sum_{k_2 k_3 q_3} (-)^{J_a + J_b} \frac{1}{\sqrt{2k_3+1}} \frac{1}{\sqrt{2k_4+1}} \begin{Bmatrix} k_3 & 1 & k_4 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix} \zeta_{q_3}^{\lambda*} \zeta_{-q_4}^{\kappa}$$

$$\cdot \left\{ \frac{\begin{bmatrix} k_2 & 1 & k_3 \\ Q_2 & q_3 & -Q_3 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} k_3 & 1 & k_4 \\ Q_3 & q_4 & -Q_4 \end{Bmatrix}}{G_{ab}(k_3) - i(\omega - Q_3 \omega_Z - \nu + \mu - \lambda)} \left[ \frac{g_{ab}(k_3) W_M(v) \int \frac{n(k_2, Q_2, k_3; v'; \nu - \mu) dv'}{G_{ab}(k_3) - i(\omega - Q_3 \omega_Z - \nu + \mu - \lambda)}}{1 - g_{ab}(k_3) \int \frac{W_M(v') dv'}{G_{ab}(k_3) - i(\omega - Q_3 \omega_Z - \nu + \mu - \lambda)}} \right] \right\}$$

$$+ \frac{(-)^{k_2+k_4+Q_2+Q_4} \begin{bmatrix} k_2 & 1 & k_3 \\ Q_2 & q_4 & -Q_3 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} k_3 & 1 & k_4 \\ Q_3 & q_3 & -Q_4 \end{Bmatrix}}{G_{ab}^*(k_3) + i(\omega + Q_3 \omega_Z - \mu + \nu - \kappa)} \left[ \frac{g_{ab}^*(k_3) W_M(v) \int \frac{n(k_2, Q_2, k_3; v'; \nu - \mu) dv'}{G_{ab}^*(k_3) + i(\omega + Q_3 \omega_Z - \mu + \nu - \kappa)}}{1 - g_{ab}^*(k_3) \int \frac{W_M(v') dv'}{G_{ab}^*(k_3) + i(\omega + Q_3 \omega_Z - \mu + \nu - \kappa)}} \right]$$

Dans le dernier terme, on a effectué un certain nombre de permutations d'indices muets et on a utilisé les relations de symétrie des (3J), de  ${}_{ab}^{\rho k} Q$  (formule 65) et de n :

$$n^*(k_2, Q_2, k_3; \nu; \nu - \mu) = (-)^{Q_2} n(k_2, -Q_2, k_3; \nu; \mu - \nu)$$

Cette relation se démontre (cf. (86-a)) en utilisant l'hermiticité de  ${}_{a|}^{(2)\rho}$  et de  ${}_{b|}^{(2)\rho}$ .

Diagrammes :

Le terme source  $B_{Q_4}^{k_4}$  peut être représenté par des diagrammes analogues à ceux de l'ordre 2 (§ II-B-5-d). On peut simplement représenter le passage de l'ordre (2) à l'ordre (4) par des diagramme de même structure que ceux qui permettent de passer de l'ordre (0) à l'ordre (2). On obtient alors 4 diagrammes correspondant à deux points de départ ( ${}_{a|}^{(2)\rho}$  ou  ${}_{b|}^{(2)\rho}$ ) et, pour chacun de ces points de départ, à deux chemins ( ${}_{ab|}^{(3)\rho}$  ou  ${}_{ba|}^{(3)\rho}$ ). La figure II-5 donne le diagramme déduit de (II-3-a) : Il faut changer les indices, mais surtout il faut faire attention à l'oscillation ( $\omega_\nu - \omega_\mu$ ) du terme d'ordre (2) qui est ici le point de départ.

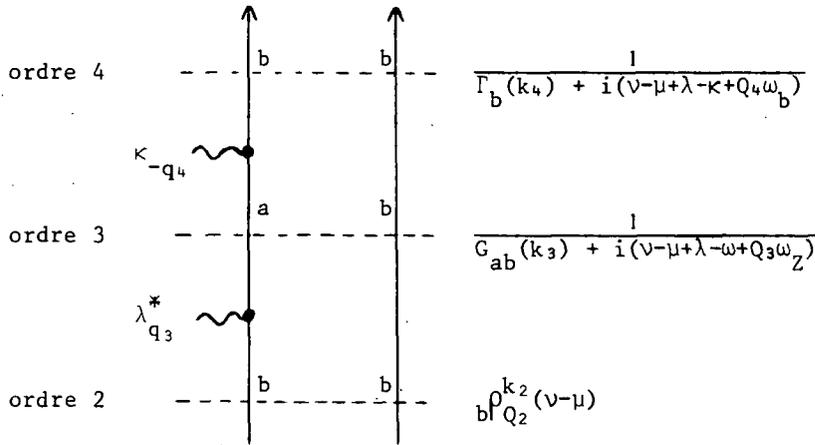


FIGURE II-5

On peut également représenter les termes d'ordre (4) par des diagrammes complets partant de l'ordre (0) : nous les avons tous représentés sur la figure II-6. Nous voyons que 16 types de chemins interviennent dans la construction de  ${}_{b|}^{(4)\rho k_4} Q_4$ .

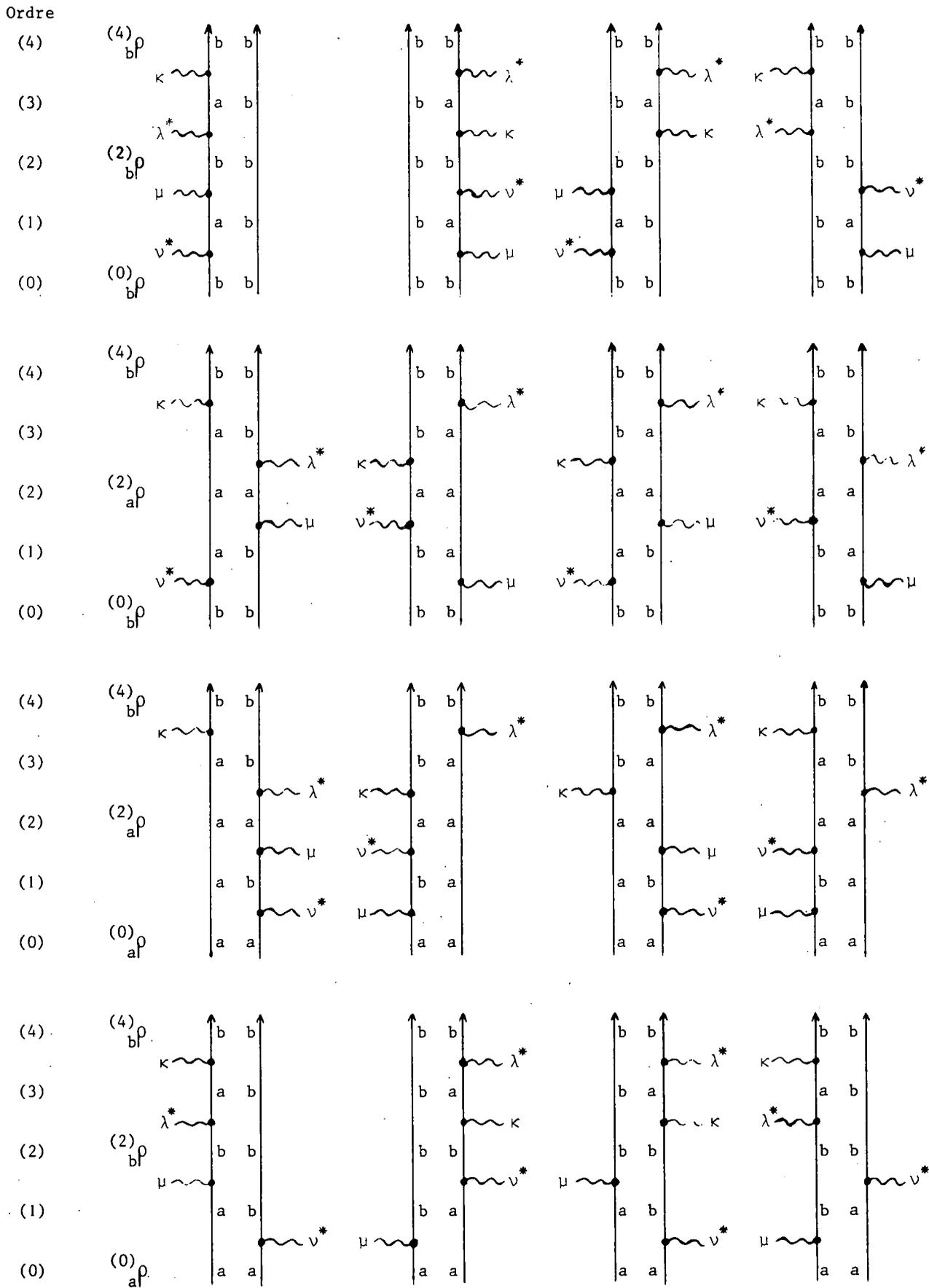


FIGURE II-6

En utilisant (86-b), on obtient :

$$B_{Q_4}^{k_4}(v, v-\mu+\lambda-\kappa) = |P_{ab}|^4 \sum_{\substack{k_0 Q_0 k_1 k_3 \\ q_1 q_2 q_3 q_4}} n(k_0, Q_0, k_1) \zeta_{q_1}^{v*} \zeta_{-q_2}^{\mu} \zeta_{q_3}^{\lambda*} \zeta_{-q_4}^{\kappa} \begin{Bmatrix} k_3 & l & k_4 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k_0 & v & \mu & \lambda & \kappa & k_1 \\ Q_0 & q_1 & q_2 & q_3 & q_4 & k_3 \end{Bmatrix}_{Q_4}^{k_4} \quad (90-a)$$

$$\begin{Bmatrix} k_0 & v & \mu & \lambda & \kappa & k_1 \\ Q_0 & q_1 & q_2 & q_3 & q_4 & k_3 \end{Bmatrix}_{Q_4}^{k_4} = \quad (90-b)$$

$$\sum_{k_2 Q_2 Q_3} (-)^{J_a + J_b} \frac{1}{\sqrt{2k_3+1} \sqrt{2k_4+1}} \frac{\begin{Bmatrix} k_2 & l & k_3 \\ Q_2 & q_3 & -Q_3 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k_3 & l & k_4 \\ Q_3 & q_4 & -Q_4 \end{Bmatrix}}{G_{ab}(k_3) - i(\omega - Q_3 \omega_Z - \nu + \mu - \lambda)} \left[ \begin{Bmatrix} \quad \quad \quad \end{Bmatrix}^{k_3} + \frac{g_{ab}(k_3) W_M(v)}{1 - g_{ab}(k_3)} \int \frac{\begin{Bmatrix} \quad \quad \quad \end{Bmatrix}^{k_3} dv'}{G_{ab}(k_3) - i(\omega - Q_3 \omega_Z - \nu + \mu - \lambda)} \right]$$

$$+ (-)^{k_2+k_4+Q_2+Q_4} \frac{\begin{Bmatrix} k_2 & l & k_3 \\ Q_2 & q_4 & -Q_3 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k_3 & l & k_4 \\ Q_3 & q_3 & -Q_4 \end{Bmatrix}}{G_{ab}^*(k_3) + i(\omega + Q_3 \omega_Z - \mu + \nu - \kappa)} \left[ \begin{Bmatrix} \quad \quad \quad \end{Bmatrix}^{k_3} + \frac{g_{ab}^*(k_3) W_M(v)}{1 - g_{ab}^*(k_3)} \int \frac{\begin{Bmatrix} \quad \quad \quad \end{Bmatrix}^{k_3} dv'}{G_{ab}^*(k_3) + i(\omega + Q_3 \omega_Z - \mu + \nu - \kappa)} \right]$$

En utilisant (54) et (55), on a alors (le calcul est analogue à celui du 2e ordre) :

$$(4) \frac{b_{Q_4}^{k_4}}{b_{Q_4}^{k_4}}(v, v-\mu+\lambda-\kappa) = |P_{ab}|^4 \sum_{\substack{k_0 Q_0 k_1 k_3 \\ q_1 q_2 q_3 q_4}} \frac{n(k_0, Q_0, k_1) \zeta_{q_1}^{v*} \zeta_{-q_2}^{\mu} \zeta_{q_3}^{\lambda*} \zeta_{-q_4}^{\kappa}}{k_0 Q_0 k_1 k_3 \Gamma_b'(k_4) + i[\nu - \mu + \lambda - \kappa + Q_4 \omega_b]} \begin{Bmatrix} k_3 & l & k_4 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix} b_{Q_4}^{k_4}(v, v-\mu+\lambda-\kappa) \quad (91)$$

$$b_{Q_4}^{k_4}(v, v-\mu+\lambda-\kappa) = \begin{Bmatrix} \quad \quad \quad \end{Bmatrix}_{Q_4}^{k_4} + \frac{\gamma_b'(k_4) W_M(v) \int \frac{\begin{Bmatrix} \quad \quad \quad \end{Bmatrix}_{Q_4}^{k_4} dv}{\Gamma_b'(k_4) + i[\nu - \mu + \lambda - \kappa + Q_4 \omega_b]}}{1 - \gamma_b'(k_4) \int \frac{W_M(v)}{\Gamma_b'(k_4) + i[\nu - \mu + \lambda - \kappa + Q_4 \omega_b]}} \quad (92)$$

$$(4) \frac{b_{Q_4}^{k_4}}{b_{Q_4}^{k_4}}(r, t) = |P_{ab}|^4 \sum_{\substack{k_0 Q_0 k_1 k_3 \\ q_1 q_2 q_3 q_4 \\ \nu \mu \lambda \kappa}} n(k_0, Q_0, k_1) \begin{Bmatrix} k_3 & l & k_4 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix} \zeta_{q_1}^{v*} \zeta_{-q_2}^{\mu} \zeta_{q_3}^{\lambda*} \zeta_{-q_4}^{\kappa} e^{i[(\omega_\nu - \omega_\mu + \omega_\lambda - \omega_\kappa)t - (k_\nu - k_\mu + k_\lambda - k_\kappa)r]} \int \frac{\begin{Bmatrix} \quad \quad \quad \end{Bmatrix}_{Q_4}^{k_4} dv}{\Gamma_b'(k_4) + i[\nu - \mu + \lambda - \kappa + Q_4 \omega_b]} \cdot \frac{1}{1 - \gamma_b'(k_4) \int \frac{W_M(v) dv}{\Gamma_b'(k_4) + i[\nu - \mu + \lambda - \kappa + Q_4 \omega_b]}} \quad (93)$$

$$\begin{aligned}
 (4) \frac{1}{\alpha!} \rho_{Q_4}^{k_4}(r, t) = & |P_{ab}| \sum_{\substack{k_0 Q_0 k_1 k_3 \\ q_1 q_2 q_3 q_4 \\ \nu \mu \kappa \lambda}} (-)^{k_3+k_4} n(k_0, Q_0, k_1) \begin{Bmatrix} k_3 & 1 & k_4 \\ J_a & J_a & J_b \end{Bmatrix} \mathcal{E}_{q_1}^{\nu*} \mathcal{E}_{-q_2}^{\mu} \mathcal{E}_{q_3}^{\lambda*} \mathcal{E}_{-q_4}^{\kappa} e^{i[(\omega_\nu - \omega_\mu + \omega_\lambda - \omega_\kappa)t - (k_\nu - k_\mu + k_\lambda - k_\kappa)r]} \\
 & \left\{ \left[ \left[ \left[ \left[ \right] \right]_{Q_4} \right]^{k_4} - \frac{\gamma_{ba} \mathcal{L}(b, a, k_3, k_4) b_{Q_4}^{k_4}(\nu, \nu - \mu + \lambda - \kappa)}{\Gamma'_b(k_4) + i(\nu - \mu + \lambda - \kappa + Q_4 \omega_b)} \right\} \frac{dv}{\Gamma'_a(k_4) + i(\nu - \mu + \lambda - \kappa + Q_4 \omega_a)} \right. \\
 & \left. 1 - \gamma'_a(k_4) \int \frac{W_M(v) dv}{\Gamma'_a(k_4) + i(\nu - \mu + \lambda - \kappa + Q_4 \omega_a)} \right.
 \end{aligned} \tag{94}$$

REMARQUE.

Les permutations d'indices et les relations de symétrie utilisées dans (89) nous ont permis de mettre en facteur  $n(k_0, Q_0, k_1)$  et  $\mathcal{E}^{\nu*} \mathcal{E}^{\mu} \mathcal{E}^{\kappa*} \mathcal{E}^{\lambda}$  de façon à isoler l'effet de l'état initial et à bien mettre en évidence la dépendance quadratique par rapport au champ électrique. Ainsi, les formules du 4e ordre prennent une forme analogue à celles du second ordre.

Cependant, il est possible de présenter les résultats du 4e ordre, d'une façon différente. Cette présentation sera plus commode dans les cas particuliers étudiés aux chapitres VII et VIII. Pour cela, remarquons que (89) peut s'écrire :

$$\begin{aligned}
 B_{Q_4}^{k_4}(\nu - \mu + \lambda - \kappa) = & \sum_{k_3 Q_3 q_4} (-)^{2J_a + Q_3} \frac{1}{\sqrt{2k_3+1} \sqrt{2k_4+1}} \begin{Bmatrix} k_3 & 1 & k_4 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix} \\
 & \left[ i \begin{Bmatrix} k_3 & 1 & k_4 \\ Q_3 & q_4 & -Q_4 \end{Bmatrix} P_{ba} \rho_{Q_3}^{k_3}(\nu - \mu + \lambda) \mathcal{E}_{-q_4}^{\kappa} - i(-)^{Q_4} \begin{Bmatrix} k_3 & 1 & k_4 \\ Q_3 & q_4 & Q_4 \end{Bmatrix} P_{ba}^* \rho_{Q_3}^{k_3*}(\mu - \nu + \kappa) \mathcal{E}_{-q_4}^{\lambda*} \right]
 \end{aligned}$$

En effectuant une permutation des indices  $\nu \leftrightarrow \mu$  et  $\kappa \leftrightarrow \lambda$  dans le second terme, on voit que celui-ci est complexe conjugué du premier à condition de changer  $Q_4$  en  $-Q_4$ . On obtient alors :

$$\frac{1}{\alpha!} \rho_{Q_4}^{k_4} = \alpha \bar{F}(k_4, Q_4) + (-)^{Q_4} \alpha^* \bar{F}(k_4, -Q_4) \tag{95}$$

où  $\alpha \bar{F}(k_4, Q_4)$  est donné par (93) ou (94) (si  $\alpha = b$  ou  $a$ ) à condition de ne garder que la première ligne de l'expression (90-b), de  $\left[ \left[ \left[ \left[ \right] \right]_{Q_4} \right]^{k_4}$ , c'est-à-dire le terme en  $[G_{ab}^{-i(\omega - Q_3 \omega_2 - \nu + \mu - \lambda)}]^{-1}$ . L'expression (95) montre de façon évidente que  $\frac{1}{\alpha!} \rho_{Q_4}^{k_4}$  est réel. C'est cette propriété qui rendra la forme (95) commode au chapitre VII où nous nous limiterons à l'étude des grandeurs longitudinales.

c) Onde progressive

Dans le cas particulier d'une onde progressive, des simplifications analogues à celles rencontrées au second ordre se produisent : les dénominateurs du 4e ordre ne dépendent plus de  $\nu$  et peuvent être sortis des intégrales. On obtient alors à la place de (93) et (94) des formules de même forme que (80) et (82) qui s'expriment en fonction de  $\Gamma_\alpha(k_4) = \Gamma'_\alpha(k_4) - \gamma'_\alpha(k_4)$  :

$$\begin{aligned}
 (4) \frac{\rho^{k_4}}{b \Gamma_{Q_4}}(r, t) = & |P_{ab}|^4 \sum_{\substack{k_0, Q_0, k_1, k_3 \\ q_1, q_2, q_3, q_4 \\ \nu, \mu, \lambda, \kappa}} n(k_0, Q_0, k_1) \begin{Bmatrix} k_3 & 1 & k_4 \\ J_b & J_b & J_a \end{Bmatrix} \xi_{q_1}^{\nu*} \xi_{-q_2}^{\mu} \xi_{q_3}^{\lambda*} \xi_{-q_4}^{\kappa} e^{i[(\omega_\nu - \omega_\mu + \omega_\lambda - \omega_\kappa)t - (k_\nu - k_\mu + k_\lambda - k_\kappa)r]} \\
 & \cdot \frac{\int \left[ \begin{array}{c} | \\ | \\ | \\ | \end{array} \right]_{Q_4}^{k_4} dv}{\Gamma_b(k_4) + i(\omega_\nu - \omega_\mu + \omega_\lambda - \omega_\kappa + Q_4 \omega_b)} \quad (96-b)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 (4) \frac{\rho^{k_4}}{a \Gamma_{Q_4}}(r, t) = & |P_{ab}|^4 \sum_{\substack{k_0, Q_0, k_1, k_3 \\ q_1, q_2, q_3, q_4 \\ \nu, \mu, \lambda, \kappa}} (-)^{k_3+k_4} n(k_0, Q_0, k_1) \begin{Bmatrix} k_3 & 1 & k_4 \\ J_a & J_a & J_b \end{Bmatrix} \xi_{q_1}^{\nu*} \xi_{-q_2}^{\mu} \xi_{q_3}^{\lambda*} \xi_{-q_4}^{\kappa} e^{i[(\omega_\nu - \omega_\mu + \omega_\lambda - \omega_\kappa)t - (k_\nu - k_\mu + k_\lambda - k_\kappa)r]} \\
 & \cdot \frac{\int \left[ \begin{array}{c} | \\ | \\ | \\ | \end{array} \right]_{Q_4}^{k_4} dv}{\Gamma_a(k_4) + i(\omega_\nu - \omega_\mu + \omega_\lambda - \omega_\kappa + Q_4 \omega_a)} \left[ 1 - \frac{\gamma_{ba} \mathcal{A}(b, a, k_3, k_4)}{\Gamma_b(k_4) + i(\omega_\nu - \omega_\mu + \omega_\lambda - \omega_\kappa + Q_4 \omega_b)} \right] \quad (96-a)
 \end{aligned}$$

avec :

$$\begin{aligned}
 \int \left[ \begin{array}{c} | \\ | \\ | \\ | \end{array} \right]_{Q_4}^{k_4} dv = & \sum_{k_2, Q_2, Q_3} (-)^{J_a + J_b} \frac{1}{\sqrt{k_3+1} \sqrt{k_4+1}} \left\{ \frac{\begin{Bmatrix} k_2 & 1 & k_3 \\ Q_2 & q_3 & -Q_4 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k_3 & 1 & k_4 \\ Q_3 & q_4 & -Q_4 \end{Bmatrix}}{1 - g_{ab}(k_3)} \int \frac{W_M(v) dv}{G_{ab}(k_3) - i(\omega - Q_3 \omega_Z - \nu + \mu - \lambda)} \right\} \frac{\left[ \begin{array}{c} | \\ | \\ | \end{array} \right]^{k_3} dv}{G_{ab}(k_3) - i(\omega - Q_3 \omega_Z - \nu + \mu - \lambda)} \\
 & + \frac{(-)^{k_2+k_4+Q_2+Q_4} \begin{Bmatrix} k_2 & 1 & k_3 \\ Q_2 & q_4 & -Q_3 \end{Bmatrix} \begin{Bmatrix} k_3 & 1 & k_4 \\ Q_3 & q_3 & -Q_4 \end{Bmatrix}}{1 - g_{ab}^*(k_3)} \int \frac{W_M(v) dv}{G_{ab}^*(k_3) + i(\omega + Q_3 \omega_Z - \mu + \nu - \kappa)} \left\{ \frac{\left[ \begin{array}{c} | \\ | \\ | \end{array} \right]^{k_3} dv}{G_{ab}^*(k_3) + i(\omega + Q_3 \omega_Z - \mu + \nu - \kappa)} \right\} \quad (97)
 \end{aligned}$$

Il est important de souligner que  $\left[ \begin{array}{c} | \\ | \\ | \end{array} \right]^{k_3}$  figurant dans (97), dépend des  $\Gamma'_\alpha(k_2)$  et pas seulement des  $\Gamma_\alpha(k_2)$  (voir II-86) : on peut dire que le 4e ordre représente la contribution des atomes ayant subi deux transitions sous l'effet du laser. La présence des  $\Gamma'_\alpha(k_2)$  dans (97) exprime le fait qu'un changement de vitesse par collision (ou diffusion multiple), se produisant entre la première et la deuxième transition optique modifie la probabilité de cette dernière. Par contre, une collision de vitesse se produisant après la deuxième transition n'est pas observable par des méthodes qui ne distinguent pas la vitesse des atomes (elle influence seulement la probabilité d'une troisième transition éventuelle) : ceci justifie la présence de  $\Gamma_\alpha(k_2)$  au dénominateur de (96-a) et (96-b).

d) Ordre quelconque

Le calcul des paragraphes a et b nous a permis de calculer les ordres 3 et 4 à partir de la matrice densité à l'ordre 2. Il est facile de décalquer ce calcul pour obtenir de façon générale les ordres (2n+1) et (2n+2) à partir de l'ordre 2n. Il suffit de remplacer (86-a) par :

$$n(k_{2n}, Q_{2n}, k_{2n+1}; v; \Omega_{2n}) = (-)^{J_a + J_b + 1} \frac{1}{\sqrt{2k_{2n} + 1} \sqrt{2k_{2n+1} + 1}} \left\{ \begin{matrix} k_{2n} & 1 & k_{2n+1} \\ J_a & J_b & J_b \end{matrix} \right\} (2n)_{bQ_{2n}}^{k_{2n}(\Omega_{2n})} \quad (98)$$

$$+ (-)^{k_{2n} + k_{2n+1}} \left\{ \begin{matrix} k_{2n} & 1 & k_{2n+1} \\ J_b & J_a & J_a \end{matrix} \right\} (2n)_{aQ_{2n}}^{k_{2n}(\Omega_{2n})}$$

où  $\Omega_{2n}$  est une fréquence du type (II,50) formée de la somme de  $n$  fréquences optiques  $\omega_\nu$  positives et de  $n$  fréquences négatives (en raison de l'approximation séculaire qui oblige  $a\rho$  et  $b\rho$  à n'avoir que des fréquences de l'ordre de  $\omega_\nu - \omega_\mu$ ). Il suffit alors de reporter (98) dans (87) et (89), de remplacer les indices 2, 3 et 4 par  $(2n)$ ,  $(2n+1)$  et  $(2n+2)$ , et de substituer  $(\Omega_{2n} - K_{2n} v)$  à  $(\nu - \mu)$  pour obtenir la matrice densité aux ordres  $(2n+1)$  et  $(2n+2)$ .

Les formules générales sont faciles à écrire; cependant, pour ne pas alourdir l'exposé, nous donnerons uniquement les expressions de  $(2n+2)_{a\rho}^-$  et  $(2n+2)_{b\rho}^-$  dans le cas d'une onde progressive (expressions valables aussi dans le cas d'une onde stationnaire pour les termes de modulation spatiale lente).

On obtient (pour simplifier, on pose  $k_{(2n+2)} = k$  et  $k_{(2n+1)} = k'$ ) :

$$(2n+2)_{b\rho}^- = |P_{ab}|^2 \sum_{\substack{k', q, q' \\ \lambda \kappa \Omega_{2n}}} \frac{\xi_q^{\lambda*} \xi_{-q}^\kappa \left\{ \begin{matrix} k' & 1 & k \\ J_b & J_b & J_a \end{matrix} \right\}}{\Gamma_b(k) + i[\Omega_{2n} + \omega_\lambda - \omega_\kappa + Q\omega_b]} (2n+2)_{dQ}^k e^{i[(\Omega_{2n} + \omega_\lambda - \omega_\kappa)t - i(K_{2n} + k_\lambda - k_\kappa)r]} \quad (99-b)$$

$$(2n+2)_{a\rho}^- = |P_{ab}|^2 \sum_{\substack{k', q, q' \\ \lambda \kappa \Omega_{2n}}} \frac{(-)^{k+k'} \xi_q^{\lambda*} \xi_{-q}^\kappa \left\{ \begin{matrix} k' & 1 & k \\ J_a & J_a & J_b \end{matrix} \right\}}{\Gamma_a(k) + i[\Omega_{2n} + \omega_\lambda - \omega_\kappa + Q\omega_a]} \left[ 1 - \frac{\gamma_{ba} \mathcal{A}(b, a, k', k)}{\Gamma_b(k) + i[\Omega_{2n} + \omega - \omega + Q\omega_b]} \right] (2n+2)_{dQ}^k e^{i[(\dots)t - i(\dots)r]} \quad (99-a)$$

avec :

$$(2n+2)_{dQ}^k = \sum_{k_{2n} Q_{2n} Q'} (-)^{J_a + J_b} \frac{1}{\sqrt{2k+1} \sqrt{2k'+1}} \left[ \begin{matrix} \left( \begin{matrix} k_{2n} & 1 & k' \\ Q_{2n} & q' & -Q' \end{matrix} \right) \left( \begin{matrix} k' & 1 & k \\ Q' & q & -Q \end{matrix} \right) \int \frac{n(k_{2n}, Q_{2n}, k'; v; \Omega_{2n}) dv}{G_{ab}(k') - i[\omega - Q'\omega_Z - \Omega_{2n} - \omega_\lambda + K_{2n} v + k_\lambda v]} \\ 1 - g_{ab}(k') \int \frac{W_M(v) dv}{G_{ab}(k') - i[\omega - Q'\omega_Z - \Omega_{2n} - \omega_\lambda + (K_{2n} + k_\lambda)v]} \\ + \frac{(-)^{k+k_{2n}+Q+Q_{2n}} \left( \begin{matrix} k_{2n} & 1 & k' \\ Q_{2n} & q & -Q' \end{matrix} \right) \left( \begin{matrix} k' & 1 & k \\ Q' & q' & -Q \end{matrix} \right) \int \frac{n(k_{2n}, Q_{2n}, k'; v; \Omega_{2n}) dv}{G_{ab}^*(k') + i[\omega + Q'\omega_Z + \Omega_{2n} - \omega_\kappa - (K_{2n} - k_\kappa)v]} \\ 1 - g_{ab}^*(k') \int \frac{W_M(v) dv}{G_{ab}^*(k') + i[\omega + Q'\omega_Z + \Omega_{2n} - \omega_\kappa - (K_{2n} - k_\kappa)v]} \end{matrix} \right] \quad (100)$$