

C H A P I T R E I I I

C O M P A R A I S O N A V E C L E S T H E O R I E S E X I S T A N T E S
(P O U R L E S S O U R C E S L U M I N E U S E S C O N V E N T I O N N E L L E S)

A - PROPRIETES OPTIQUES DU MILIEU. FORME DE RAIE

L'étude détaillée des grandeurs optiques est en dehors des limites fixées pour ce travail, cependant il est important de montrer brièvement que le formalisme développé au chapitre précédent permet de retrouver un grand nombre de propriétés optiques bien connues. La grandeur optique la plus intéressante (la seule que nous étudierons) est la polarisation électrique macroscopique \vec{P} aux fréquences voisines de la fréquence du faisceau laser. L'expression de \vec{P} en fonction du champ électrique définit les susceptibilités linéaires et non linéaires du milieu

$$\vec{P} = \chi_L \vec{E} + \chi_{NL}^{(3)} : (\vec{E} \vec{E} \vec{E}) + \dots$$

L'expression de $\vec{P}(\vec{r}, t)$ à partir de $\vec{\rho}(\vec{r}, t)$ est donnée par :

$$\vec{P}(\vec{r}, t) = \text{Tr} (\vec{P} \cdot \vec{\rho}(\vec{r}, t)) \tag{1}$$

dont les composantes standard sont (en utilisant (II,34), (II,7) et (A,4)) :

$$\begin{aligned} P_q(\vec{r}, t) &= \frac{P_{ab}}{\sqrt{3}} ab \bar{\rho}_q^l(\vec{r}, t) + \frac{P_{ba}}{\sqrt{3}} ba \bar{\rho}_q^l(\vec{r}, t) \\ &= \frac{P_{ab}}{\sqrt{3}} ab \bar{\rho}_q^l(\vec{r}, t) + (-)^q \frac{P_{ab}}{\sqrt{3}} ab \bar{\rho}_{-q}^l(\vec{r}, t) \end{aligned} \tag{2}$$

Si l'on ne conserve que le premier ordre de perturbation, la polarisation ne contient que les fréquences des modes du faisceau laser. On peut poser :

$$\begin{aligned} (1) \vec{P} &= \sum_{\nu} \left[(1) \vec{P}^{\nu} e^{-i(\omega_{\nu} t - k_{\nu} r)} + (1) \vec{P}^{\nu*} e^{i(\omega_{\nu} t - k_{\nu} r)} \right] \\ (1) \vec{P}_q &= \sum_{\nu} \left[(1) P_q^{\nu} e^{-i(\omega_{\nu} t - k_{\nu} r)} + (-)^q (1) P_{-q}^{\nu*} e^{i(\omega_{\nu} t - k_{\nu} r)} \right] \end{aligned} \tag{3}$$

On obtient aisément $(1)\mathcal{P}_q^v$ en reportant dans (2) l'expression (II,60) de $(1)\overline{\rho}_{ab}$. Pour obtenir une expression plus facile à comparer aux expressions classiques, nous avons appliqué les relations de symétrie (II,24), (II,25), (II,61-b) et (II,66) :

$$(1)\mathcal{P}_q^v = i \frac{|P_{ab}|^2}{\sqrt{3}} \sum_{q_1 k_0 Q_0} (-)^{q_1} \frac{\begin{pmatrix} k_0 & 1 & 1 \\ -Q_0 & q_1 & -q \end{pmatrix} n(k_0, Q_0, 1) W(\omega_v - \omega + q\omega_Z + iG_{ba}(1))}{1 - g_{ba}(1) W(\omega_v - \omega + q\omega_Z + iG_{ba}(1))} \mathcal{Z}_{q_1}^v \quad (4)$$

On obtient ainsi la susceptibilité linéaire complexe anisotrope du milieu qui donne l'absorption (ou le gain) et l'indice pour la fréquence ω_v . En particulier, la formule (4) contient tous les effets d'anisotropie d'indice provenant de l'anisotropie de l'état atomique, caractérisé par $n(k_0, Q_0, 1)$, (effets paramagnétiques) et tous les effets d'anisotropie provenant du champ magnétique (effets diamagnétiques).

Si l'excitation par la décharge est isotrope, on obtient (n est défini en (II,58)) :

$$(1)\mathcal{P}_q^v = -i \frac{|P_{ab}|^2}{3} n \mathcal{Z}_q^v \frac{W(\omega_v - \omega + q\omega_Z + iG_{ba}(1))}{1 - g_{ba}(1) W(\omega_v - \omega + q\omega_Z + iG_{ba}(1))} \quad (5)$$

Dans ce cas $(1)\mathcal{P}_q^v$ est proportionnel à \mathcal{Z}_q^v . La dépendance par rapport à q du coefficient de proportionnalité implique, entre autres, l'effet Faraday diamagnétique (ici, dans le cas limite d'un effet Zeeman normal, du fait de l'approximation $\omega_a - \omega_b \sim 0$).

D'autre part, la forme de raie d'absorption (ou d'émission induite) liée à la partie imaginaire de la susceptibilité est proportionnelle à :

$$\text{Re} \left\{ \frac{W(\omega_v - \omega + q\omega_Z + iG_{ba}(1))}{1 - g_{ba}(1) W(\omega_v - \omega + q\omega_Z + iG_{ba}(1))} \right\} = \text{Re} \left\{ \frac{W(\omega_v - \omega + q\omega_Z - \Delta(1) + i\Gamma'_{ab}(1))}{1 - (\gamma'_{ab}(1) + i\Delta'(1)) W(\omega_v - \omega + q\omega_Z - \Delta(1) + i\Gamma'_{ab}(1))} \right\} \quad (6)$$

C'est exactement la forme de raie d'émission calculée par RAUTIAN et SOBEL'MAN (réf. (9) formule 6-2) dans le cas de collisions fortes au sens des variables externes (cf. § II-A-5-a). Ces auteurs ont montré que la partie imaginaire de g_{ba} , qui provient de la corrélation entre le changement de la vitesse atomique et le déphasage du dipôle optique (cf. § II-A-5-a), produit une dissymétrie de la raie. La partie imaginaire du coefficient de relaxation G_{ba} produit un déplacement de la raie sous l'effet des collisions (collisions déphasantes). RAUTIAN et SOBEL'MAN ont également montré que la formule (6) contient aussi l'effet Dicke d'affinement des raies par collisions lorsque les parties réelles, Γ'_{ab} et γ'_{ab} , de G_{ab} et g_{ab} sont supérieures à la largeur Doppler Δv . Plus précisément lorsque

$$\Gamma'_{ab} = \Gamma'_{ab} - \gamma'_{ab} \ll \Delta v \ll \Gamma'_{ab} \quad \text{et} \quad \gamma'_{ab} \quad (7)$$

le libre parcours moyen des atomes devient très inférieur à la longueur d'onde, ce qui annule l'effet Doppler, mais la largeur naturelle de la raie reste fine, car les collisions changent la vitesse sans détruire le dipôle. Ces conditions extrêmes ne sont pas réalistes dans le domaine optique, mais sont connues dans le domaine des hyperfréquences. Lorsque (7) est réalisé, la forme asymptotique de W (Appendice F : formule (13)) peut être utilisée. En omettant la partie imaginaire de G_{ba} et de g_{ba} , on obtient (en champ nul) :

$$\frac{W}{1 - \gamma'_{ab} W} = \frac{1}{\frac{1}{W} - \gamma'_{ab}} \approx \frac{1}{\Gamma'_{ab} + i(\omega - \omega_{\nu}) - \gamma'_{ab}} = \frac{1}{\Gamma_{ab} + i(\omega - \omega_{\nu})} \quad (8)$$

On voit que, avec la condition (7), la forme de raie (6) devient Lorentzienne de largeur Γ_{ab} .

On voit donc que le calcul de la polarisation du milieu au premier ordre de perturbation fait apparaître de nombreuses propriétés optiques bien connues. On peut dire qu'à cet ordre de perturbation (limite des faibles intensités lumineuses), notre calcul n'est autre que la théorie semi-classique (ici par opposition à quantique) de l'interaction atomes-rayonnement.

Le calcul de la polarisation aux ordres de perturbation supérieurs fait apparaître des fréquences nouvelles qui n'existaient pas dans le faisceau laser (phénomène bien connu en optique non linéaire) et produit une saturation de la polarisation linéaire obtenue au premier ordre. Cette saturation joue un rôle très important dans le mécanisme de fonctionnement des lasers, mais comme ce problème sort du cadre du présent travail, nous nous contenterons d'étudier un cas très particulier au chapitre VIII (§ C) (forme du "Lamb-dip" en champ magnétique nul).

B - COMPARAISON AVEC LA THEORIE QUANTIQUE DU CYCLE DE POMPAGE OPTIQUE DE COHEN-TANNOUDJI

Dans ce paragraphe, nous nous proposons de rechercher les conditions nécessaires pour que les équations développées au chapitre précédent soient équivalentes à celles obtenues par COHEN-TANNOUDJI (2)(3) dans sa théorie quantique du pompage optique avec une source conventionnelle. Ainsi, par comparaison, nous pourrions voir de façon plus claire quels sont les aspects caractéristiques du pompage laser.

Pour retrouver, à partir de notre calcul, les équations d'évolution du niveau excité et du niveau fondamental de la théorie de COHEN-TANNOUDJI (réf. (3), équ. III,C-3 et III,D-1), il est nécessaire de faire des hypothèses de deux natures différentes :

Le premier type d'hypothèses n'est pas fondamental, malgré son influence déterminante sur la forme explicite des équations d'évolution : ce sont des hypothèses liées au cas expérimental

étudié et qui peuvent facilement être introduites *a posteriori* dans nos équations (par exemple : $\Gamma_a = 0$, c'est-à-dire une durée de vie infinie du niveau fondamental, absence de relaxation par collisions). Moyennant ces hypothèses, les termes d'émission spontanée (II,23-a et b) et d'évolution sous l'effet du champ magnétique (II,27-b; B,4) sont identiques aux termes correspondants $\frac{d^{(2)}}{dt} \sigma$ et $\frac{d^{(3)}}{dt} \sigma$ de COHEN-TANNOUDJI (réf. (3): II,B-1). Seule leur forme change du fait de l'emploi de la base $\{ T_q^k \}$ au lieu de la base $\{ | m \gg m' | \}$.

Le terme d'excitation par la décharge, Λ , ne pose pas de problème non plus. Pour traiter le cas du pompage optique habituel sans décharge, il suffit de supprimer ce terme et de supposer tous les atomes dans le niveau a, à l'instant initial.

La différence fondamentale vient des hypothèses sur l'excitation optique, c'est-à-dire du terme $\frac{d^{(1)}}{dt} \sigma$ de la théorie de COHEN-TANNOUDJI : dans son cas, la lumière est représentée par des photons incohérents entre eux et l'on obtient une expression simple de $\frac{d^{(1)}}{dt} \sigma$ en fonction de la matrice densité σ elle-même. Pour le pompage laser, le terme correspondant $\frac{d^{(1)}}{dt} \rho = -i [R, \rho]$ est calculé à partir d'une représentation classique du champ électrique optique. La complexité introduite par la cohérence de la lumière interdit un traitement rigoureux des équations. On est alors amené à utiliser un traitement de perturbation : à chaque ordre (n) le terme de pompage optique s'exprime en fonction des termes de la matrice densité calculés à l'ordre précédent.

Dans un premier paragraphe, nous allons montrer l'analogie de forme qui existe, moyennant un nombre très limité d'hypothèses, entre l'expression $\frac{d^{(1)}}{dt} \sigma = f(\sigma)$ de COHEN-TANNOUDJI et le terme source des équations du second ordre que nous écrirons $\frac{d^{(1)}}{dt} {}^{(2)}\rho = f({}^{(0)}\rho)$.

Dans le second paragraphe, nous montrerons que notre formalisme peut donner exactement la même expression $\frac{d^{(1)}}{dt} \rho = f(\rho)$, valable à tous les ordres, si l'on suppose la lumière incohérente et le spectre large, c'est-à-dire si l'on fait les mêmes hypothèses que COHEN-TANNOUDJI.

Aux paragraphes 3 et 4, nous interpréterons les différences entre les deux types de pompage optique et, aux paragraphes 5 et 6, nous chercherons d'autres conditions, moins restrictives que celles du pompage optique conventionnel, mais qui permettent quand même d'obtenir des équations analogues. Le paragraphe 6 sera particulièrement consacré au problème de la distribution des vitesses.

L'un des aspects importants de ce chapitre est la généralisation au pompage laser de la notion de temps de pompage. Au paragraphe 7, nous donnons une expression opératorielle des équations du second ordre (II,84) exprimée à l'aide de ce temps de pompage.

1) Analogie formelle avec les expressions à l'ordre 2

Dans ce paragraphe, nous montrons l'analogie des résultats de façon purement algébrique et nous déterminons les conditions nécessaires à sa validité; cependant, nous ne verrons la raison physique de cette analogie qu'au paragraphe B-3. Pour pouvoir établir le parallèle avec les résultats de COHEN-TANNOUJJI, nous devons utiliser des hypothèses comparables en ce qui concerne la relaxation : nous négligerons les collisions de vitesse qui restituent une partie des grandeurs optiques ($g_{ab} = 0$) et nous ignorons les collisions déphasantes ($G_{ab}(k) = \Gamma'_{ab}(k) = \Gamma_{ab}(k)$ réel). Remarquons que nous ne faisons aucune hypothèse sur la relaxation des grandeurs atomiques, car elle n'intervient pas dans le terme source de l'ordre 2 que nous voulons comparer à $\frac{d^{(1)}}{dt} \sigma$. C'est seulement pour la comparaison des équations d'évolution totales que ce problème se pose (modification du terme $\frac{d^{(2)}}{dt} \sigma$ de COHEN-TANNOUJJI ou introduction d'un nouveau terme de collision).

Pour établir la comparaison, nous devons supposer que l'onde laser est progressive (de façon à éviter les modulations spatiales) et ne prendre que la partie non modulée (temporellement) des termes sources (II,67) et (II,72). Pour le niveau inférieur a, nous prenons uniquement le terme source direct A' (II,72), car le terme de transfert (II,73) doit être comparé au terme d'émission spontanée $\frac{d^{(2)}}{dt} \sigma$ de COHEN-TANNOUJJI. En utilisant les expressions (II,58-a) de $n(k_0, Q_0, k_1)$ et (II,48-b) de ${}^{(0)}\rho_{\alpha}^{(v)}$, on obtient :

$$A_{Q_2}^{k_2}(v, 0) = \frac{d^{(1)}}{dt} \quad {}^{(2)}\rho_{aQ_2}^{k_2}(v, r, t) = \tag{11-a}$$

$$= -|P_{ab}|^2 \sum_{\substack{q_1 q_2 \\ k_0 Q_0}} (-)^{k_1+k_2} \sqrt{2k_0+1} (2k_1+1) \sqrt{2k_2+1} \left\{ \begin{matrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_a & J_a & J_b \end{matrix} \right\} \left[\left\{ \begin{matrix} k_0 & 1 & k_1 \\ J_a & J_b & J_b \end{matrix} \right\} {}^{(0)}\rho_{bQ_0}^{k_0}(v) + (-)^{k_0+k_1} \left\{ \begin{matrix} k_0 & 1 & k_1 \\ J_b & J_a & J_a \end{matrix} \right\} {}^{(0)}\rho_{aQ_0}^{k_0}(v) \right]$$

$$e_{q_1}^* e_{-q_2} \sum_{\nu} |\hat{c}^{\nu}|^2 \left[\frac{\begin{matrix} \begin{matrix} k_0 & 1 & k_1 \\ Q_0 & q_1 & -Q_1 \end{matrix} & \begin{matrix} k_1 & 1 & k_2 \\ Q_1 & q_2 & -Q_2 \end{matrix} \\ \Gamma_{ab}(k_1) - i(\omega - \omega_{\nu} - Q_1 \omega_Z + k_{\nu} v) \end{matrix}}{\Gamma_{ab}(k_1) + i(\omega - \omega_{\nu} + Q_1 \omega_Z + k_{\nu} v)} + \frac{(-)^{k_0+k_2+Q_0+Q_2} \begin{matrix} \begin{matrix} k_0 & 1 & k_1 \\ Q_0 & q_2 & -Q_1 \end{matrix} & \begin{matrix} k_1 & 1 & k_2 \\ Q_1 & q_1 & -Q_2 \end{matrix} \end{matrix}}{\Gamma_{ab}(k_1) + i(\omega - \omega_{\nu} + Q_1 \omega_Z + k_{\nu} v)} \right]$$

$$B_{Q_2}^{k_2}(v, 0) = \frac{d^{(1)}}{dt} \quad {}^{(2)}\rho_{bQ_2}^{k_2}(v, r, t) = \tag{11-b}$$

$$= -|P_{ab}|^2 \sum_{\substack{q_1 q_2 \\ k_0 Q_0}} \sqrt{2k_0+1} (2k_1+1) \sqrt{2k_2+1} \left\{ \begin{matrix} k_1 & 1 & k_2 \\ J_b & J_b & J_a \end{matrix} \right\} \left[\left\{ \begin{matrix} k_0 & 1 & k_1 \\ J_a & J_b & J_b \end{matrix} \right\} {}^{(0)}\rho_{bQ_0}^{k_0}(v) + (-)^{k_0+k_1} \left\{ \begin{matrix} k_0 & 1 & k_1 \\ J_b & J_a & J_a \end{matrix} \right\} {}^{(0)}\rho_{aQ_0}^{k_0}(v) \right]$$

$$e_{q_1}^* e_{-q_2} \sum_{\nu} |\hat{c}^{\nu}|^2 \left[\frac{\begin{matrix} \begin{matrix} k_0 & 1 & k_1 \\ Q_0 & q_1 & -Q_1 \end{matrix} & \begin{matrix} k_1 & 1 & k_2 \\ Q_1 & q_2 & -Q_2 \end{matrix} \\ \Gamma_{ab}(k_1) - i(\omega - \omega_{\nu} - Q_1 \omega_Z + k_{\nu} v) \end{matrix}}{\Gamma_{ab}(k_1) + i(\omega - \omega_{\nu} + Q_1 \omega_Z + k_{\nu} v)} + \frac{(-)^{k_0+k_2+Q_0+Q_2} \begin{matrix} \begin{matrix} k_0 & 1 & k_1 \\ Q_0 & q_2 & -Q_1 \end{matrix} & \begin{matrix} k_1 & 1 & k_2 \\ Q_1 & q_1 & -Q_2 \end{matrix} \end{matrix}}{\Gamma_{ab}(k_1) + i(\omega - \omega_{\nu} + Q_1 \omega_Z + k_{\nu} v)} \right]$$

Dans ces expressions, on a séparé la partie angulaire du champ électrique en posant :

$$\vec{C}_q^\nu = e_q \vec{C}^\nu \quad (\vec{e} \text{ est un vecteur unitaire}) \quad (12)$$

Ces expressions doivent être comparées aux formules (III,A-1 réf. (3)) de COHEN-TANNOUDJI qui s'écrivent (cf. notation de l'appendice A-§ 2 pour l'opérateur \vec{D}) :

$$\begin{aligned} \frac{d^{(1)}}{dt} a \sigma &= - \left(\frac{1}{2T_p} + i\Delta E' \right) (\vec{e}^* \cdot_{ab} \vec{D}) (\vec{e} \cdot_{ba} \vec{D}) a \sigma - \left(\frac{1}{2T_p} - i\Delta E' \right) a \sigma (\vec{e}^* \cdot_{ab} \vec{D}) (\vec{e} \cdot_{ba} \vec{D}) \\ \frac{d^{(1)}}{dt} b \sigma &= \frac{1}{T_p} (\vec{e} \cdot_{ba} \vec{D}) a \sigma (\vec{e}^* \cdot_{ab} \vec{D}) \end{aligned} \quad (13)$$

Projetées sur la base T_Q^k ces équations s'écrivent :

$$\begin{aligned} \frac{d^{(1)}}{dt} a \sigma_{Q_2}^{k_2} &= - \sum_{\substack{q_1 q_2 \\ k_0 Q_0}} (-)^{q_2} e_{q_1}^* e_{-q_2} a \sigma_{Q_0}^{k_0} \left[\left(\frac{1}{2T_p} + i\Delta E' \right) \text{Tr} ({}_{ab} D_{q_1} {}_{ba} D_{q_2} a T_{Q_0}^{k_0} a T_{Q_2}^{k_2 \dagger}) \right. \\ &\quad \left. + \left(\frac{1}{2T_p} - i\Delta E' \right) \text{Tr} ({}_a T_{Q_0}^{k_0} {}_{ab} D_{q_1} {}_{ba} D_{q_2} a T_{Q_2}^{k_2 \dagger}) \right] \end{aligned} \quad (14)$$

$$\frac{d^{(1)}}{dt} b \sigma_{Q_2}^{k_2} = \frac{1}{T_p} \sum_{\substack{q_1 q_2 \\ k_0 Q_0}} (-)^{q_2} e_{q_1}^* e_{-q_2} a \sigma_{Q_0}^{k_0} \text{Tr} ({}_{ba} D_{q_2} a T_{Q_0}^{k_0} {}_{ab} D_{q_1} b T_{Q_2}^{k_2 \dagger})$$

En utilisant les formules (A,19) et (A,11), on obtient :

$$\frac{d^{(1)}}{dt} a \sigma_{Q_2}^{k_2} = - \sum_{\substack{q_1 q_2 \\ k_0 Q_0}} (-)^{k_0+k_2} \sqrt{(2k_0+1)(2k_2+1)} (2J_b+1) e_{q_1}^* e_{-q_2} a \sigma_{Q_0}^{k_0} \sum_{jm} (2j+1) \left\{ \begin{matrix} k_0 & 1 & j \\ J_b & J_a & J_a \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} j & 1 & k_2 \\ J_a & J_a & J_b \end{matrix} \right\} \quad (15-a)$$

$$\left[\left(\frac{1}{2T_p} - i\Delta E' \right) \begin{pmatrix} k_0 & 1 & j \\ Q_0 & q_1 & -m \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j & 1 & k_2 \\ m & q_2 & -Q_2 \end{pmatrix} + (-)^{k_0+k_2+Q_0+Q_2} \left(\frac{1}{2T_p} + i\Delta E' \right) \begin{pmatrix} k_0 & 1 & j \\ Q_0 & q_2 & -m \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j & 1 & k_2 \\ m & q_1 & -Q_2 \end{pmatrix} \right]$$

$$\frac{d^{(1)}}{dt} b \sigma_{Q_2}^{k_2} = - \sum_{\substack{q_1 q_2 k_0 Q_0}} (-)^{k_0} \sqrt{(2k_0+1)(2k_2+1)} (2J_b+1) e_{q_1}^* e_{-q_2} a \sigma_{Q_0}^{k_0} \frac{1}{T_p} \quad (15-b)$$

$$\sum_{jm} (-)^j (2j+1) \left\{ \begin{matrix} k_0 & 1 & j \\ J_b & J_a & J_a \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} j & 1 & k_2 \\ J_a & J_a & J_b \end{matrix} \right\} \begin{pmatrix} k_0 & 1 & j \\ Q_0 & q_1 & -m \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j & 1 & k_2 \\ m & q_2 & -Q_2 \end{pmatrix}$$

$$= - \sum_{\substack{q_1 q_2 k_0 Q_0}} (-)^{k_0} \sqrt{(2k_0+1)(2k_2+1)} (2J_b+1) e_{q_1}^* e_{-q_2} a \sigma_{Q_0}^{k_0} \sum_{jm} (-)^j (2j+1) \left\{ \begin{matrix} k_0 & 1 & j \\ J_b & J_a & J_a \end{matrix} \right\} \left\{ \begin{matrix} j & 1 & k_2 \\ J_a & J_a & J_b \end{matrix} \right\}$$

$$\left[\left(\frac{1}{2T_p} - i\Delta E' \right) \begin{pmatrix} k_0 & 1 & j \\ Q_0 & q_1 & -m \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j & 1 & k_2 \\ m & q_2 & -Q_2 \end{pmatrix} + (-)^{k_0+k_2+Q_0+Q_2} \left(\frac{1}{2T_p} + i\Delta E' \right) \begin{pmatrix} k_0 & 1 & j \\ Q_0 & q_2 & -m \end{pmatrix} \begin{pmatrix} j & 1 & k_2 \\ m & q_1 & -Q_2 \end{pmatrix} \right]$$

Supposons les trois conditions suivantes satisfaites :

- a) Seul le niveau inférieur est peuplé (${}^{(0)}\rho_b = 0$) ce qui fait disparaître les termes correspondant à l'émission stimulée.
- b) Il n'y a qu'un seul temps de relaxation pour les cohérences optiques : $\Gamma_{ab}(k_1) = \Gamma_{ab}$
- c) Le champ magnétique est nul et le terme $Q_1\omega_z$ disparaît dans (11).

On voit alors que les formules (11) et (15) sont formellement identiques. En effet, les conditions b et c rendent les dénominateurs de (11) indépendants de k_1 et de Q_1 qui deviennent de simples indices de sommation et peuvent être assimilés à j et m dans (15). Pour que l'analogie soit complète, il ne reste plus qu'à poser :

$$\frac{1}{2T_p(\nu)} = \frac{|P_{ab}|^2}{(2J_b+1)} \sum_{\nu} |\mathcal{E}^{\nu}|^2 \mathcal{R}e \left\{ \frac{1}{\Gamma_{ab} + i(\omega - \omega_{\nu} + k_{\nu}\nu)} \right\} = \frac{|P_{ab}|^2}{(2J_b+1)} \int I(\nu) d\nu \mathcal{R}e \left\{ \frac{1}{\Gamma_{ab} + i(\omega - \nu + k_{\nu}\nu)} \right\} \quad (16-a)$$

$$\Delta E'(\nu) = \frac{|P_{ab}|^2}{(2J_b+1)} \sum_{\nu} |\mathcal{E}^{\nu}|^2 \mathcal{I}m \left\{ \frac{1}{\Gamma_{ab} + i(\omega - \omega_{\nu} + k_{\nu}\nu)} \right\} = \frac{|P_{ab}|^2}{(2J_b+1)} \int I(\nu) d\nu \mathcal{I}m \left\{ \frac{1}{\Gamma_{ab} + i(\omega - \nu + k_{\nu}\nu)} \right\} \quad (16-b)$$

$I(\nu)$ est le spectre de la lumière (discret dans le cas du laser) et ν devient une variable continue d'intégration ($\nu \equiv \omega_{\nu}$).

Ces expressions sont tout à fait équivalentes aux expressions (III,A-2) réf. (3), de COHEN-TANNOUDJI.

REMARQUES.

Les conditions b et c sont beaucoup trop restrictives; on peut les élargir dans deux cas :

- α) si le laser émet un très grand nombre de modes dont l'écartement est petit devant Γ_{ab} , on peut remplacer le spectre discret par un spectre continu de largeur Δ . La condition c devient alors :

$$\omega_z \ll \Delta \quad (\text{COHEN-TANNOUDJI : } \omega_e \text{ et } \omega_t \ll \Delta)$$

En effet, on a alors $I(\nu \pm Q_1\omega_z) \approx I(\nu)$ et l'on peut négliger $Q_1\omega_z$ au dénominateur de (11). Quant à la condition b, elle peut ne pas être remplie si l'on a :

$$\Gamma_{ab}(k) \ll \Delta$$

En effet, la fonction $[\Gamma_{ab}(k_1) + ix]^{-1}$ a une largeur de l'ordre de $\Gamma_{ab}(k)$, mais sa somme sur x , de $-\infty$ à $+\infty$ est indépendante de $\Gamma_{ab}(k)$: les intégrales de (16-a) et de (16-b) ne dépendent donc pas de $\Gamma_{ab}(k)$ si le spectre $I(\nu)$ varie peu sur une largeur de quelques $\Gamma_{ab}(k)$.

β) Les expressions (11) à (15) ont été calculées pour une vitesse donnée : pour avoir le résultat final, il faut encore intégrer sur les vitesses (rappelons que les conditions envisagées au début de ce paragraphe sont celles qui permettent d'écrire les équations globales (II-84). Rappelons aussi que ${}^{(0)}\rho_{\alpha}(\nu) \propto W_M(\nu)$). Si la largeur Doppler est telle que :

$$\Gamma_{ab}(k), \omega_z \ll \Delta\nu \quad (17)$$

les remarques faites en α) sur l'intégration par rapport à ν s'appliquent alors à l'intégration par rapport à ν : on peut négliger $Q_1\omega_z$ et la dépendance de Γ_{ab} par rapport à k dans l'expression (11). L'expression de $\frac{d^{(1)}}{dt} \rho^{(2)}$ en fonction de $\rho_a^{(0)}$ prend alors la forme des équations de COHEN-TANNOUJJI quel que soit le spectre de la lumière (si le spectre est étroit, les équations de COHEN-TANNOUJJI restent valables si la thermalisation des vitesses dans le niveau fondamental est rapide).

2) Equivalence des théories pour une lumière conventionnelle

L'analogie formelle démontrée au paragraphe précédent ne s'applique qu'à la partie non modulée de l'ordre (2) de perturbation. Dans le cas d'une excitation laser, il existe aussi des termes modulés qui n'ont pas d'équivalent dans la théorie de COHEN-TANNOUJJI et, de plus, l'ordre (2) n'est qu'une approximation. Avant de discuter ces deux points, nous allons montrer, avec notre formalisme, qu'en supposant la lumière incohérente et le spectre large, on peut obtenir des équations valables à tous les ordres, équivalentes à celle de COHEN-TANNOUJJI.

Pour représenter la lumière classique, nous supposons les modes très rapprochés (spectre continu $I(\nu)$) et sans relation de phase, c'est-à-dire que les phases relatives entre les différents modes sont aléatoires. Dans ces conditions, toute composante de la matrice densité (de chaque niveau) évoluant à une fréquence non nulle est donnée par la somme d'un grand nombre de termes (du type $e^{i(\omega_\nu - \omega_\mu)t}$) de phase aléatoire : cette somme s'annule en moyenne et les termes de battements entre modes disparaissent.

Il reste à montrer que l'on peut éviter le calcul par itération. Pour cela, reprenons à la base le principe du calcul du chapitre II. L'équation (II,2) peut se décomposer en équations entre opérateurs valables à tous les ordres :

$$\dot{\rho}_a^k = \sum_{kQ} \left[-(iQ\omega_a + \Gamma_a(k)) \rho_{aQ}^k + \Theta_{bQ} \rho_{bQ}^k \right] a T_Q^k + a \Lambda + i \int \left\{ \zeta^*(\nu) e^{i(\nu t - k_\nu r)} (\vec{e}_{ab}^*)_{ba} \rho - \zeta(\nu) e^{-i(\nu t - k_\nu r)} \rho (\vec{e}_{ba}^*)_{ab} \right\} d\nu \quad (18-a)$$

$$\dot{\rho}_b^k = - \sum_{kQ} (iQ\omega_b + \Gamma_b(k)) \rho_{bQ}^k b T_Q^k + b \Lambda + i \int \left\{ \zeta(\nu) e^{-i(\nu t - k_\nu r)} (\vec{e}_{ba}^*)_{ab} \rho - \zeta^*(\nu) e^{i(\nu t - k_\nu r)} \rho (\vec{e}_{ab}^*)_{ba} \right\} d\nu \quad (18-b)$$

$$\dot{\rho}_{ab}^k = - \sum_{kQ} [i(Q\omega_z - \omega) + \Gamma_{ab}(k)] \rho_{abQ}^k a b T_Q^k + i \int \zeta^*(\nu) e^{i(\nu t - k_\nu r)} [(\vec{e}_{ab}^*)_{ba} \rho - a \rho (\vec{e}_{ab}^*)_{ba}] d\nu \quad (18-c)$$

Pour ne pas compliquer l'écriture, nous avons simplifié la relaxation (un peu plus qu'au paragraphe précédent, puisque ici nous n'avons pas introduit de collisions de vitesse pour les variables atomiques). De plus, nous avons déjà effectué l'approximation séculaire en ne gardant que les fréquences

proches de la résonance.

Dans le formalisme de l'équation (II,2), c'est-à-dire en posant $\dot{\rho} = \frac{d}{dt} \rho(v, r+v\tau, t+\tau)$, on peut écrire formellement la solution générale de (18-c) (on a déjà posé $\tau = 0$) :

$${}_{ab} \rho_Q^k(v, r, t) = i \int \tilde{\mathcal{C}}^*(v) e^{i(vt - k_{\nu} r)} dv \int_{-\tau_0}^0 \left\{ (\vec{e}_{ab}^* \vec{P})_{\vec{b}} \rho(v, r+v\tau', t+\tau') - {}_a \rho(v, r+v\tau', t+\tau') (\vec{e}_{ab}^* \vec{P})_{\vec{Q}}^k \right. \\ \left. \cdot e^{i(\nu - \omega + Q\omega_Z - k_{\nu\nu})\tau' + \Gamma_{ab}(k)\tau'} d\tau' \right. \quad (19)$$

où $t - \tau_0$ est l'instant du début du pompage optique. En reportant cette expression dans (18-b), par exemple, on obtient le terme source :

$$\frac{d^{(1)}}{dt} {}_b \rho = - \iint \tilde{\mathcal{C}}(v') \tilde{\mathcal{C}}^*(v) dv dv' e^{i[(\nu - \nu')t - (k_{\nu} - k_{\nu'})r]} (\vec{e}_{ba} \vec{P})_{\vec{kQ}} \int_{-\tau_0}^0 e^{i(\nu - \omega + Q\omega_Z - k_{\nu\nu})\tau' + \Gamma_{ab}(k)\tau'} \\ \cdot \left\{ (\vec{e}_{ab}^* \vec{P})_{\vec{b}} \rho(v, r+v\tau', t+\tau') - {}_a \rho(v, r+v\tau', t+\tau') (\vec{e}_{ab}^* \vec{P})_{\vec{Q}}^k \right\} {}_{ab} T_Q^k d\tau' \\ + \text{hermit. conjugué} \quad (20)$$

Dans le cas qui nous intéresse ici, la lumière est incohérente (phase aléatoire) et l'onde est progressive (pas de modulation spatiale). En moyenne, on peut donc négliger tous les termes de battement $\nu \neq \nu'$ dans l'expression (20). Il en résulte que ${}_a \rho$ et ${}_b \rho$ n'ont plus de comportement oscillatoire, tandis que les cohérences optiques ont le même spectre que le faisceau excitateur.

L'expression (20) s'écrit alors :

$$\frac{d^{(1)}}{dt} {}_b \rho = - \int_{-\infty}^{+\infty} I(\nu) d\nu (\vec{e}_{ba} \vec{P})_{\vec{kQ}} \int_{-\tau_0}^0 e^{i(\nu - \omega + Q\omega_Z - k_{\nu\nu})\tau' + \Gamma_{ab}(k)\tau'} d\tau' \\ \left\{ (\vec{e}_{ab}^* \vec{P})_{\vec{b}} \rho(v, r+v\tau', t+\tau') - {}_a \rho(v, r+v\tau', t+\tau') (\vec{e}_{ab}^* \vec{P})_{\vec{Q}}^k \right\} {}_{ab} T_Q^k + \text{hermit. conjugué} \quad (21)$$

Cette expression est équivalente à l'expression (II,4) (réf. (2)) de COHEN-TANNOUDJI. Nous pouvons donc utiliser le même raisonnement : lorsque $-\tau' \gg \frac{1}{\Delta}$ ($\Delta =$ largeur du spectre $I(\nu)$), l'exponentielle oscille très vite en fonction de ν et l'intégrale sur ν est nulle. Donc si ${}_a \rho$ et ${}_b \rho$ varient peu dans un intervalle de temps $\sim \frac{1}{\Delta}$, on peut les sortir de l'intégrale sur τ' en prenant leur valeur pour la borne supérieure $\tau' = 0$ de cette intégration. On obtient :

$$\begin{aligned} \frac{d^{(1)}}{dt} \rho_b &= -(\vec{e}_{ba} \cdot \vec{P}) \sum_{kQ} \left\{ (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{P}) \rho_b(v,r,t) - \rho_a(v,r,t) (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{P}) \right\} \frac{1}{Q} \int I(v) \frac{1 - e^{-i(\nu - \omega + Q\omega_Z - k_\nu v)\tau_0 - \Gamma_{ab}(k)\tau_0}}{\Gamma_{ab}(k) + i(\nu - \omega + Q\omega_Z - k_\nu v)} dv + \text{H.C.} \\ &= -(\vec{e}_{ba} \cdot \vec{P}) \sum_{kQ} \left\{ (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{P}) \rho_b(v,r,t) - \rho_a(v,r,t) (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{P}) \right\} \frac{1}{Q} \int \frac{I(v) dv}{\Gamma_{ab}(k) + i(\nu - \omega + Q\omega_Z - k_\nu v)} + \text{H.C.} \end{aligned} \quad (22-a)$$

$$\frac{d^{(1)}}{dt} \rho_b = -(\vec{e}_{ba} \cdot \vec{P}) \left\{ (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{P}) \rho_b - \rho_a (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{P}) \right\} \int \frac{I(v) dv}{\Gamma_{ab} + i(\nu - \omega - k_\nu v)} + \text{Herm. conj.} \quad (22-b)$$

$$= \frac{1}{T_p} (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) \rho_a (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) - \left(\frac{1}{2T_p} + i\Delta E' \right) \rho_b (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) - \left(\frac{1}{2T_p} - i\Delta E' \right) (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) \rho_b$$

On est passé de la première à la seconde ligne de (22-a) en supposant $\tau_0 \gg \frac{1}{\Gamma_{ab}}$ (le pompage agit depuis un temps suffisant pour que les transitoires soient amorties), et on est passé de (22-a) à (22-b) en faisant les hypothèses déjà signalées au paragraphe précédent :

$$\omega_a, \omega_b \ll \Delta \quad (\text{donc } Q\omega_Z \text{ est négligeable}) \quad (23-a)$$

$$\Gamma_{ab} \text{ indépendant de } k \text{ (ou } \Gamma_{ab}(k) \ll \Delta) \quad (23-b)$$

Enfin, dans (22-b) on a fait usage des définitions (16) de $\frac{1}{T_p(v)}$ et de $\Delta E'(v)$. Les temps qui caractérisent l'évolution de ρ_a et ρ_b sont de l'ordre de l'inverse de $\Gamma_a(k) + \frac{1}{T_p(v)}$ et $\Gamma_b(k) + \frac{1}{T_p(v)}$. La condition pour passer de (21) à (22) (c'est-à-dire une variation lente de ρ_a et ρ_b) s'écrit donc :

$$\Gamma_a(k) + \frac{1}{T_p} \ll \Delta \quad (24-a)$$

$$\Gamma_b(k) + \frac{1}{T_p} \ll \Delta \quad (24-b)$$

Dans le cas traité par COHEN-TANNOUDJI, le niveau a est le niveau fondamental, donc (en supposant en plus qu'il n'y a pas de collisions désorientantes), $\Gamma_a = 0$. La condition (24-a) devient simplement :

$$\frac{1}{T_p} \ll \Delta \quad (\text{réf. (3), condition II,D,5}) \quad (25)$$

D'autre part, la condition

$$\frac{1}{T_p} \ll \Gamma_b \quad (\text{II,D,4 réf. (3)}) \quad (26)$$

permet de négliger la population du niveau b devant celle du niveau a (puisque $\rho_b^A = 0$), c'est-à-dire de négliger ρ_b dans les équations (20), (21) et (22) (pas d'émission stimulée). La condition (24-b) se réduit à $\Gamma_b \ll \Delta$ (II,D,2, réf. (3)) mais elle n'est pas indispensable à cet endroit du calcul car on néglige ρ_b .

Dans ces conditions, l'équation (22-b) et l'équation correspondante pour ρ_a sont parfaitement équivalentes aux expressions (13) de COHEN-TANNOUDJI (III,A,1, réf. (3)).

S'il y a de l'émission stimulée (niveau b peuplé soit par ρ_b , soit parce que (26) n'est pas satisfait), l'expression (22-b) montre que l'on peut aisément généraliser la théorie du pompage optique de COHEN-TANNOUJJI en ajoutant au terme d'absorption (13) un terme d'émission stimulée (conditions à satisfaire : 23 et 24) :

$$\frac{d^{(1)'}}{dt} \rho_a = \frac{1}{T_p} (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) \rho_b (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) \quad (27)$$

$$\frac{d^{(1)'}}{dt} \rho_b = -\left(\frac{1}{2T_p} + i\Delta E'\right) \rho_b (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) - \left(\frac{1}{2T_p} - i\Delta E'\right) (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) \rho_b$$

REMARQUE.

Notre théorie semi-classique de l'interaction atomes-lumière appliquée au cas pompage par une lumière incohérente est très voisine de celle de DODD et SERIES (50). L'introduction par ces auteurs d'une fonction de corrélation pour le champ électrique rend, d'ailleurs, la théorie beaucoup plus convaincante que la simple omission des termes de battements dans notre cas.

3) Nécessité du calcul par itération dans le cas d'une lumière laser

Nous venons de voir que nos équations permettent de retrouver les résultats de COHEN-TANNOUJJI dans le cas du pompage par une lumière incohérente de spectre large (avec les conditions 23 et 24). Le calcul du paragraphe précédent nous permet également de voir les aspects caractéristiques du pompage optique laser qui nous empêchent, dans le cas général, d'écrire des équations identiques à celles valables pour les sources classiques.

Dans tous les cas, l'expression (20) est valable, mais dès que l'on a une source cohérente composée de plusieurs fréquences (laser multimode, ou même monomode si l'onde est stationnaire), on ne peut plus passer à (21). La présence des termes de battement $e^{i(\nu-\nu')t}$ dans (20) laisse prévoir que la solution exacte des équations intégrales-différentielles donnant ρ_a et ρ_b contient une infinité de fréquences d'oscillation toutes couplées. Il en résulte que les équations ne sont pas rigoureusement solubles. Même si l'on ne s'intéresse qu'aux termes non modulés de ρ_a et ρ_b , on ne peut trouver la solution exacte car elle est couplée aux termes de toutes les fréquences possibles par les termes de battement de (20). Nous voyons donc pourquoi la méthode d'itération est inévitable dans le cas général.

Dans le cas d'un laser monomode, il est possible, rigoureusement, de passer de (20) à (21), mais une nouvelle difficulté apparaît : on ne peut négliger la variation de ρ_a et ρ_b pendant un temps de l'ordre de $1/\Delta$ puisque ce temps est pratiquement infini. Cependant, nous verrons au prochain paragraphe que d'autres conditions moins restrictives permettent de passer de (21) à (22).

La méthode d'itération, telle que nous l'avons vue au chapitre II, consiste à reporter la solution d'ordre zéro (laser nul - solution indépendante du temps) dans l'équation (18-c). Celle-ci

donne la solution d'ordre 1 (cohérences optiques seules) que l'on reporte dans (18-a et b) pour obtenir la solution d'ordre 2 et ainsi de suite. L'expression (20) nous montre que l'on peut, si l'on ne s'intéresse qu'aux grandeurs atomiques, passer directement d'ordres pairs en ordres pairs. Ainsi, en portant l'ordre zéro dans (20), on obtient la solution d'ordre deux. Dans ce cas, il est possible de ne garder que la solution non modulée ($v = v'$) : on peut alors aisément faire le passage de (20) à (21), puis de (21) à (22), puisque ${}^{(0)}\rho$ ne dépend pas du temps. On redémontre ainsi l'analogie trouvée au § B-1 et l'on comprend aisément pourquoi, dans le cas général, cette analogie n'existe qu'entre $\frac{d^{(1)}}{dt} {}^{(2)}\rho = f({}^{(0)}\rho)$ et $\frac{d^{(1)}}{dt} \sigma = f(\sigma)$.

|| Pour les effets linéaires non modulés, l'analogie complète dans tous les cas indique qu'il n'y a pas de différence entre la lumière cohérente et la lumière incohérente. Ce sera en particulier la conclusion de l'étude de l'effet Hanle au chapitre IV (§ B).

REMARQUE.

On peut également interpréter les termes linéaires modulés à la fréquence de battement entre modes en les comparant aux modulations produites par une source incohérente modulée en intensité ou en polarisation (⁵¹).

4) Comparaison des non linéarités dans les deux types de pompage optique

Le fait que les équations obtenues dans le cas d'une source incohérente se comparent aux équations "linéaires" du cas cohérent ne signifie pas que les effets non linéaires soient inexistant dans le cas des sources conventionnelles. Bien au contraire, le fait que $\frac{d^{(1)}}{dt} \sigma$ s'exprime en fonction σ produit un comportement essentiellement non linéaire de σ par rapport à l'intensité lumineuse. La saturation ainsi que les élargissements radiatifs sont des phénomènes bien connus en pompage optique "classique". Le fait qu'en général l'analogie des formules ne soit pas valable à tous les ordres exprime un comportement nettement différent des deux types d'excitation optique en ce qui concerne les effets non linéaires. Cette différence se voit par comparaison des formules (20) et (22) :

. Avec de la lumière incohérente, les effets non linéaires sont uniquement reliés à l'intensité lumineuse. En (22) la variation de ${}_b\rho$ s'exprime comme le produit d'une expression dépendant uniquement de l'état des atomes dans les niveaux (et de la polarisation de la lumière) par une intégrale qui ne dépend que de l'intensité et du spectre de la lumière. Cela revient à dire que l'on peut raisonner en probabilités de transition (c'est le sens de $1/T_p$) qui ne dépendent que de l'intensité de la lumière, et que les saturations proviennent uniquement de la modification de ρ sous l'effet du pompage (par exemple, certains sous-niveaux Zeeman se vident et d'autres se remplissent). Cette propriété qui vient de l'absence de relation de phase entre fréquences différentes (passage (20) → (21)) ou, en d'autres termes, du temps de corrélation très court de la lumière, s'exprime dans le formalisme de COHEN-TANNOUJJI

par des transitions optiques quasi instantanées. La saturation provient d'atomes subissant plusieurs cycles de pompes successifs mais totalement indépendants.

. Avec de la lumière cohérente (en plus des phénomènes liés à l'intensité ($\nu = \nu'$)), on voit apparaître l'effet de la phase relative des modes. Il en résulte de nombreux effets non linéaires nouveaux, tels que l'apparition d'une infinité de fréquences de modulation et la saturation réciproque (sensible à la phase) des modes les uns par les autres (cf. chapitre VII). On ne peut plus parler de probabilité de transition. Si un atome subit plusieurs transitions d'un niveau à l'autre, celles-ci ne sont pas indépendantes : d'une transition à la suivante, la phase des modes est restée constante. On ne peut plus parler de transitions instantanées, car du fait de l'existence de terme de "cohérence optique", $_{ab}^0$, les atomes sont en réalité à chaque instant dans une superposition cohérente des deux états a et b. On peut dire qu'en plus des effets non linéaires provenant de la saturation des niveaux, existent des effets non linéaires provenant de l'existence des "cohérences optiques".

Remarquons que le calcul de perturbation fait penser à des transitions se produisant à des instants déterminés mais en fait, cette image ne correspond pas à une réalité physique comme dans le cas des sources incohérentes. Les diagrammes définis au chapitre II correspondent à des amplitudes de probabilité qu'il faut sommer sur toutes les fréquences et sur tous les instants possibles pour les points d'interaction (c'est cette sommation qui introduit les dénominateurs résonnants). Une transition d'un niveau à l'autre (passage de l'ordre $(2n)$ à l'ordre $(2n+2)$) est caractérisée par 2 points d'interaction consécutifs sur les diagrammes. Lorsque la lumière est incohérente, la contribution des diagrammes s'annule par interférence si ces deux points font appel à deux fréquences différentes (ν et ν') et si le temps qui sépare les deux points d'interaction est nettement supérieur à $1/\Delta$: c'est le sens du passage de (20) à (21), puis de (21) à (22). C'est pour cela que l'on peut parler de transitions pratique-

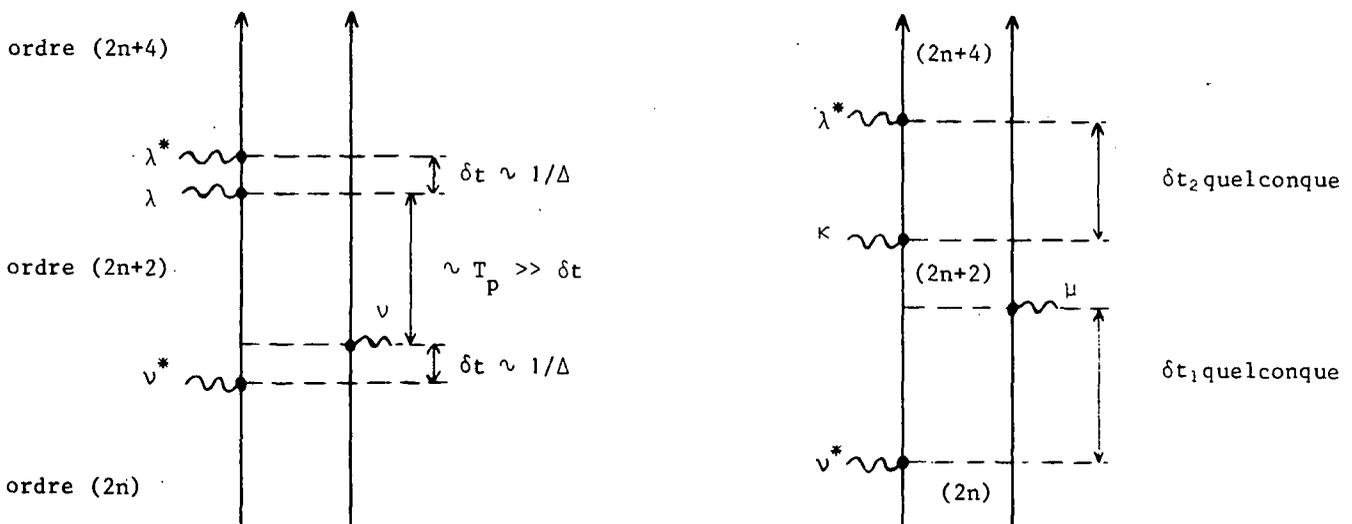


FIGURE III-1 a) incohérent

b) cohérent

ment instantanées. Si, comme c'est toujours le cas, $T_p \gg \frac{1}{\Delta}$, les transitions successives (passages d'ordres pairs en ordres pairs) sont totalement indépendantes (figure III-1-a). Lorsqu'on a une lumière laser, au contraire (figure III-1-b), la contribution des diagrammes ne s'annule pas lorsque deux interactions, formant une paire, se font avec des modes différents, ou lorsque les points d'interaction sont séparés par un temps très long (la limite est alors, comme nous le verrons au § 5, la durée de vie $1/\Gamma_{ab}$ des "cohérences optiques" atomiques). Ceci explique la présence de modulations, l'impossibilité de définir des transitions instantanées et le souvenir de phase entre les ordres de perturbation successifs.

5) Autres cas physiques permettant un calcul valable à tous les ordres

Nous avons démontré que dans le cas d'une source lumineuse conventionnelle, il est possible de résoudre nos équations sans utiliser de méthode d'itération, ce qui donne un résultat analogue à celui de COHEN-TANNOUDJI. Nous allons voir qu'il existe d'autres cas physiques, avec d'autres séries d'hypothèses, qui permettent de passer de (20) à (22-a) et éventuellement à (22-b).

Pour passer de (20) à (21), il est indispensable dans tous les cas qu'il n'y ait pas de terme de battement. Deux cas expérimentaux satisfont à cette condition :

- le laser monomode
- la lumière incohérente classique (§ précédent).

Dans les deux cas, l'onde doit être progressive. On peut approximativement classer dans la seconde catégorie le cas d'un laser comportant beaucoup de modes dont la phase relative est aléatoire (il ne faut pas que le laser fonctionne en "modes bloqués", cf. § IV-C-4).

Pour passer de (21) à (22-a), il faut que ${}_a\rho$ et ${}_b\rho$ varient assez lentement pour que l'on puisse les sortir de l'intégrale en τ' . Cette condition peut être réalisée dans plusieurs cas (autres que le cas habituel du § B-2, caractérisé par les conditions (24)).

a) Régime stationnaire

Ce cas est très intéressant car il n'impose aucune condition sur Δ , Γ_a , Γ_b , Γ_{ab} et T_p . En effet, en régime stationnaire, ${}_a\rho$ et ${}_b\rho$ sont indépendants du temps (rappelons qu'il n'y a pas de termes modulés) : il est donc évident que l'on peut les sortir de l'intégration de (21). Le résultat fourni par l'équation (22) ne devra évidemment être employé que dans l'équation donnant la solution stationnaire ($\dot{\rho} = \frac{d^{(1)}}{dt} \rho + \frac{d^{(2)}}{dt} \rho + \frac{d^{(3)}}{dt} \rho = 0$). On ne pourra calculer les transitoires sans restreindre les hypothèses.

b) Evolution de ρ_a et ρ_b lente devant $1/\Gamma_{ab}(k)$

Lorsque le spectre de la lumière est étroit ($\Delta \lesssim \Gamma_{ab}(k)$), les conditions (24) deviennent trop restrictives ou même irréalisables (comme c'est le cas pour un laser monomode). On voit dans ce cas que l'on peut encore passer de (21) à (22-a) si ρ_a et ρ_b varient peu pendant le temps d'amortissement de l'exponentielle $e^{-\Gamma_{ab}(k)t}$, c'est-à-dire pendant un temps de l'ordre de $1/\Gamma_{ab}(k)$. Ceci donne les conditions :

$$\Gamma_a + \frac{1}{T_p} \ll \Gamma_{ab} \quad (28-a)$$

$$\Gamma_b + \frac{1}{T_p} \ll \Gamma_{ab} \quad (\text{pour tous les } k \text{ possibles}) \quad (28-b)$$

Ces conditions peuvent être réalisées à forte pression (par exemple $P \sim 10$ Torr pour le mélange He-Ne), car Γ_{ab} est plus sensible aux collisions que Γ_a et Γ_b . Lorsque les collisions sont peu nombreuses, ces conditions ne peuvent être réalisées, car $\Gamma_{ab} \sim \frac{1}{2} (\Gamma_a + \Gamma_b)$. Cependant, si a est le niveau fondamental ($\Gamma_a = 0$), la condition (28-a) devient :

$$\frac{1}{T_p} \ll \Gamma_{ab} \quad (29)$$

tandis que la condition (28-b) n'a pas d'utilité si l'on peut négliger l'émission stimulée, c'est-à-dire omettre ρ_b dans (21). Pour cela, il faut que le niveau b ne soit pas excité directement ($\Lambda_b=0$) et que le pompage optique ne peuple pas trop ce niveau :

$$\frac{1}{T_p} \ll \Gamma_b \quad (30)$$

Ceci nous montre qu'on peut traiter rigoureusement l'évolution (et non seulement l'état stationnaire comme en a) dans le cas du pompage optique d'un niveau fondamental par un laser monomode, si le pompage est assez faible pour que les conditions (29) et (30) soient satisfaites.

REMARQUE.

Le fait que l'on puisse passer de (21) à (22-a) exprime que ρ_a et éventuellement ρ_b évoluent assez lentement par rapport au temps caractéristique de l'équation (8-c) (donnant ρ_{ab}) pour que l'on puisse prendre à chaque instant la solution stationnaire de cette équation en considérant ρ_a et ρ_b comme constants. Dans le cas d'une source lumineuse incohérente, le temps caractéristique est le temps de corrélation $1/\Delta$ de la lumière. On obtient alors les conditions (24). Si ce temps de corrélation devient très long (lumière cohérente), c'est le taux de relaxation $\Gamma_{ab}(k)$ qui détermine le temps caractéristique de l'équation (8-c) et l'on obtient les conditions (18).

6) Problèmes posés par l'intégration sur les vitesses

Dans tous les cas, T_p et $\Delta E'$ dépendent de la vitesse. En général, il faut résoudre l'équation donnant $\rho(v, r, t)$ puis intégrer sur les vitesses pour obtenir la matrice densité totale $\bar{\rho}(r, t)$. Pour des raisons que nous verrons plus loin, dans le cas du pompage optique habituel, COHEN-TANNOUJJI admet qu'il y a découplage entre les variables internes et les variables externes, c'est-à-dire que les atomes pompés optiquement conservent toujours une distribution Maxwellienne des vitesses. On peut donc écrire :

$$\alpha \rho(v, r, t) = \alpha \bar{\rho}(r, t) W_M(v) \quad (31)$$

Dans ces conditions, on peut intégrer l'équation d'évolution par rapport à v avant de la résoudre. On voit aisément, en intégrant (22-b), que l'équation d'évolution de $\bar{\rho}$ est la même que celle de ρ , à condition de prendre une valeur moyenne pour T_p et $\Delta E'$:

$$\left(\frac{1}{2T_p} + i\overline{\Delta E'} \right) = \frac{|P_{ab}|^2}{2J_b + 1} \int W_M(v) dv \int I(v) dv \frac{1}{\Gamma_{ab} + i(\omega - v + k_y v)} = \frac{|P_{ab}|^2}{2J_b + 1} \int I(v) W(v - \omega + i\Gamma_{ab}) dv \quad (32)$$

Le découplage exprimé par la relation (31) ne peut être réalisé que si au moins l'une des deux conditions suivantes est remplie :

- α) • Le spectre de la lumière pompante est assez uniforme sur toute la largeur Doppler de la raie pour que tous les atomes soient excités de la même façon. Ceci impose : $\Delta \gg \Delta v$.
- β) • Les collisions changeant la vitesse sans affecter l'état interne des atomes sont très nombreuses et thermalisent très vite la distribution des vitesses.

Dans le pompage optique habituel, la première de ces conditions est souvent bien vérifiée tandis que la seconde l'est très bien pour le niveau fondamental (niveau sans structure électronique, comme Hg ou en présence d'un gaz tampon pour les alcalins par exemple).

En pompage optique laser, pour les termes non modulés du second ordre, nous avons vu (cf. équ. (II,84)) que l'on peut intégrer les équations sur la vitesse avant de les résoudre. Puisque le terme source $\frac{d^{(1)}}{dt} {}^{(2)}\rho$ s'exprime à partir de ${}^{(0)}\rho$, et que les vitesses correspondant à ${}^{(0)}\rho$ sont réparties suivant la distribution de Maxwell, on voit que les valeurs moyennes \bar{T}_p et $\overline{\Delta E'}$ définies en (32) sont valables. Les équations donnant ${}^{(2)}\bar{\rho}$ gardent donc, après moyenne sur les vitesses, la forme des équations classiques. Remarquons que l'intégration sur v fait disparaître, dans (II,84), l'effet de la diffusion des vitesses sur les variables atomiques : ceci rapproche encore nos équations du second ordre des équations de COHEN-TANNOUJJI.

Pour le pompage avec un laser monomode ou une source incohérente de spectre étroit, nous avons montré qu'il était possible dans certaines conditions (a: état stationnaire. b: variation lente devant $1/\Gamma_{ab}$) d'écrire une équation valable à tous les ordres et analogues aux équations de COHEN-TANNOUDJI, pour la matrice densité ${}_{\alpha}\rho(v)$. Cependant, dans ce cas, il n'est pas possible, en général, de définir un temps de pompage moyen analogue à celui de (32). En effet, la distribution de vitesses n'est plus Maxwellienne. Dans (32), il n'est même pas possible de remplacer $W_M(v)$ par une autre distribution puisque, d'une part il y a couplage entre les variables internes et les variables externes et que, d'autre part la distribution de vitesses des atomes pompés dépend de l'intensité de la lumière pompante. En particulier, il est bien connu que le pompage par un laser monomode produit un "trou" (ou une "bosse") dans la distribution des vitesses, et que la profondeur et la largeur de ce trou dépendent de la puissance du laser. Dans ces conditions, l'intégration sur v des formules (32) ne permet pas de faire apparaître ${}_{\alpha}\bar{\rho}(r,t)$ en facteur. C'est pourquoi, il n'est pas possible d'écrire une équation d'évolution globale de ${}_{\alpha}\bar{\rho}$ ni de définir un temps de pompage moyen proportionnel à l'intensité du pompage.

Pour que ces opérations soient possibles, il est nécessaire que le "trou" produit dans la distribution de vitesses soit négligeable. Comme nous le montrerons à l'appendice E, ceci nécessite toujours la condition :

$$\frac{1}{T_p(v)} \ll \Gamma'_{\alpha} \quad (33)$$

Lorsque la diffusion des vitesses est peu importante ($\Gamma'_{\alpha} \sim \Gamma_{\alpha}$), la condition (33) devient :

$\frac{1}{T_p(v)} \ll \Gamma_{\alpha}$. Ce cas n'est pas intéressant car il correspond à un pompage optique faible pour lequel le calcul du second ordre suffit. Par contre, lorsque la thermalisation des vitesses est rapide ($\Gamma'_{\alpha} \sim \Gamma'_{\alpha} \gg \Gamma_{\alpha}$), la condition (33) peut être réalisée dans des conditions de pompage intense, ce qui donne de l'intérêt à l'équation globale obtenue, à tous les ordres, pour ${}_{\alpha}\bar{\rho}$.

REMARQUES.

- La thermalisation complète des vitesses est, en général, peu probable pour les niveaux excités, car l'état interne a une forte probabilité d'être altéré à chaque collision, et parce que le temps pendant lequel la thermalisation peut se faire est limité par la durée de vie radiative ($\Gamma_{\alpha} \geq \gamma_{\alpha} = 1/\tau_{\alpha}$). Par contre, comme nous l'avons déjà signalé, la thermalisation des vitesses est souvent réalisable dans un niveau fondamental.
- Lorsque la distribution des vitesses est Maxwellienne, (${}_{\alpha}\rho(v) = W_M(v) {}_{\alpha}\bar{\rho}$), il n'est pas nécessaire de supposer que ${}_{\alpha}\rho$ et ${}_{\beta}\rho$ varient lentement devant $1/\Delta$ (conditions (24)) ou

devant $1/\Gamma_{ab}$ (condition (28)) pour que l'on puisse écrire une équation donnant l'évolution de $\bar{\rho}_\alpha$ à tous les ordres : ces conditions ne sont plus nécessaires pour passer de (21) à (22) si l'on intègre d'abord sur v . Il suffit que la variation de ${}_a\rho$ et ${}_b\rho$ soit négligeable pendant un temps de l'ordre de $1/\Delta v$ (et que ces quantités varient assez lentement par rapport à r). En effet, pour des temps $-\tau' \gg 1/\Delta v$, l'exponentielle de (21) oscille très vite et l'intégrale sur v s'annule. La condition s'écrit (ici il s'agit de T_p moyen) :

$$\Gamma_\alpha + \frac{1}{T_p} \ll \Delta v \quad (34)$$

7) Forme opératorielle des équations

Nous venons de montrer, en cherchant l'analogie avec les équations de COHEN-TANNOUJJI, que l'on pouvait mettre sous forme opératorielle le terme source des équations globales (II,84) donnant les composantes dans la base T_Q^k des termes non modulés de $\bar{\rho}_\alpha^{(2)}$. Nous pouvons donc écrire les équations (II,84) sous forme entièrement opératorielle. Cette forme nous sera utile au chapitre IX, car elle est plus commode pour effectuer des rotations des axes de référence. En régime stationnaire, (II,84) s'écrit :

$$\begin{aligned} [\{ \Gamma_b \} + i\omega_b \mathcal{J}_z] {}_b\bar{\rho}^{(2)} &= \frac{1}{T_p} (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) {}_a\bar{\rho}^{(0)}(\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) - \left(\frac{1}{2T_p} + i\overline{\Delta E}' \right) {}_b\bar{\rho}^{(0)}(\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D})(\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) \\ &\quad - \left(\frac{1}{2T_p} - i\overline{\Delta E}' \right) (\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D})(\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) {}_b\bar{\rho}^{(0)} \end{aligned} \quad (35-b)$$

$$\begin{aligned} [\{ \Gamma_a \} + i\omega_a \mathcal{J}_z] {}_a\bar{\rho}^{(2)} &= \frac{1}{T_p} (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D}) {}_b\bar{\rho}^{(0)}(\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) - \left(\frac{1}{2T_p} + i\overline{\Delta E}' \right) (\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D})(\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) {}_a\bar{\rho}^{(0)} \\ &\quad - \left(\frac{1}{2T_p} - i\overline{\Delta E}' \right) {}_a\bar{\rho}^{(0)}(\vec{e}_{ab}^* \cdot \vec{D})(\vec{e}_{ba} \cdot \vec{D}) + \{ Tr \} {}_b\bar{\rho}^{(2)} \end{aligned} \quad (35-a)$$

$\{ \Gamma_\alpha \}$, \mathcal{J}_z et $\{ Tr \}$ sont des opérateurs de l'espace de Liouville, c'est-à-dire des opérateurs agissant sur ρ considéré comme élément d'un espace vectoriel (nous reparlerons de façon plus détaillée de ce formalisme au chapitre IX). Ces trois opérateurs représentent respectivement la relaxation, l'effet du champ magnétique et le transfert. Dans la base T_Q^k , $\{ \Gamma_\alpha \}$ et \mathcal{J}_z sont diagonaux; $\{ Tr \}$ couple les sous-espaces a et b mais est diagonal en k et Q.

Les conditions nécessaires pour que les équations (35) soient valables sont très peu restrictives (conditions (23-a) : $\omega_a, \omega_b \ll \Delta v$, et (23-b) : $\Gamma_{ab}(k)$ indépendant de k ou $\Gamma_{ab}(k) \ll \Delta v$). Les équations (35) peuvent inclure les phénomènes qui changent la vitesse sans altérer les grandeurs atomiques. Cependant, la définition (32) de $\left(\frac{1}{2T_p} + i\overline{\Delta E}' \right)$ n'est valable que si les collisions qui changent la vitesse détruisent complètement les grandeurs optiques. Dans le cas général, avec tous les types de colli-

sions étudiés au chapitre II, les équations (II,84) et (II,83) montrent qu'il faut poser (il faut alors remplacer Γ_{ab} par G_{ab} dans la condition (23-b)) :

$$\frac{1}{2\bar{T}_p} + i\overline{\Delta E'} = \frac{|P_{ab}|^2}{2J_b+1} \sum_{\nu} I_{\nu} \frac{W(\omega_{\nu}-\omega+iG_{ba})}{1 - g_{ba} W(\omega_{\nu}-\omega+iG_{ba})} \quad (36)$$

On voit donc que la contribution de chaque mode à $(\frac{1}{2\bar{T}_p} + i\overline{\Delta E'})$ reste dans tous les cas le produit de l'intensité du mode par la valeur prise pour ce mode par le facteur de forme de raie intervenant dans la susceptibilité linéaire du milieu (cf. (5) en champ faible). $1/\bar{T}_p$ qui représente l'effet des transitions réelles est relié à la partie réelle de la susceptibilité qui n'est autre que la forme de raie d'absorption (6). $\overline{\Delta E'}$ qui représente l'effet des transitions virtuelles (cf. COHEN-TANNOUJJI (3), § III-A-3) est relié à la partie imaginaire, c'est-à-dire à la dispersion.

Dans certains cas, nous avons vu que l'on peut écrire les équations (35) à tous les ordres de perturbation en remplaçant ${}^{(0)}\bar{\rho}$ et ${}^{(2)}\bar{\rho}$ par $\bar{\rho}$. Dans le cas d'une excitation par un laser monomode (avec thermalisation rapide des vitesses), il est évident que l'on peut encore appliquer la formule (36); en effet, dans le calcul du régime stationnaire, l'expression de $\frac{d^{(1)}}{dt} \bar{\rho}_b$ en fonction de $\bar{\rho}_a$ et $\bar{\rho}_b$ s'obtient exactement de la même façon que l'expression de $\frac{d^{(1)}}{dt} {}^{(2)}\bar{\rho}_b$ à partir de ${}^{(0)}\bar{\rho}_a$ et ${}^{(0)}\bar{\rho}_b$ dans le cas général ($\bar{\rho}_a$, comme ${}^{(0)}\bar{\rho}_a$ dans le cas général, est proportionnel à $W_M(\nu)$ et ne dépend pas du temps). Dans le cas d'une source incohérente, l'utilisation de (36) est moins évidente. Nous ne nous occuperons pas ici de ce problème.