

Chapitre 13

INTERACTION DIPOLAIRE ÉLECTRIQUE ENTRE UNE ONDE ÉLECTROMAGNÉTIQUE ET UN MILIEU ATOMIQUE

NB. Nous notons $(\vec{})^c$ les vecteurs susceptibles de prendre des valeurs complexes et $(\vec{})$ ceux qui sont réels. Le complexe conjugué de () est noté $()^\dagger$, au moyen du symbole, \dagger , qui désigne également l'adjoint d'un opérateur.

13.1 Introduction

13.1.1 Onde plane sinusoïdale dans le vide

Considérons une onde électromagnétique caractérisée par le potentiel scalaire Φ et par le potentiel vecteur \vec{A} . En utilisant la jauge de Coulomb, $\Phi = 0$, dans le vide*, il vient

$$\begin{aligned}\Phi &= 0, \quad \text{div} [\vec{A}] = 0, \quad \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{A}}{\partial t^2} - \Delta \vec{A} = \vec{0} \\ \vec{B} &= \text{rot} [\vec{A}], \quad \vec{E} = -\frac{\partial \vec{A}}{\partial t}\end{aligned}$$

Pour décrire une onde plane électromagnétique sinusoïdale, il est commode d'introduire les grandeurs complexes

$$\begin{aligned}\vec{A}^c &= \vec{A}_0^c e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})}, \quad \text{div} [\vec{A}] = 0 \Leftrightarrow \vec{k} \cdot \vec{A}_0^c = 0 \\ \vec{B}^c &= \text{rot} [\vec{A}^c] = (i \vec{k} \wedge \vec{A}_0^c) e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} = \vec{B}_0^c e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} \\ \vec{E}^c &= -\frac{\partial \vec{A}^c}{\partial t} = (i\omega \vec{A}_0^c) e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})} = \vec{E}_0^c e^{-i(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r})}\end{aligned}$$

où \vec{A}_0^c , \vec{k} et ω sont des constantes. Le vecteur \vec{k} est le vecteur d'onde de l'onde plane considérée et ω en est la pulsation ($\omega > 0$).

Les divers champs physiques sont reliés aux grandeurs complexes introduites par les relations

$$\vec{A} = \text{Re} [\vec{A}^c], \quad \vec{B} = \text{Re} [\vec{B}^c], \quad \vec{E} = \text{Re} [\vec{E}^c]$$

*Rappelons les équations de Maxwell satisfaites par le champ électrique, \vec{E} , et le champ magnétique, \vec{B} .

$$\begin{aligned}\vec{B} &= \text{rot} [\vec{A}], \quad \vec{E} = -\frac{\partial \vec{A}}{\partial t} - \text{grad} [\Phi] \\ \text{div} [\vec{E}] &= \frac{\rho}{\varepsilon_0}, \quad \text{rot} [\vec{B}] = \mu_0 \left(\vec{j} + \varepsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \right)\end{aligned}$$

où Φ est le potentiel scalaire et \vec{A} le potentiel vecteur, tandis que ρ et \vec{j} sont respectivement la densité de charge et la densité de courant.

La célérité de la lumière est c_0 :

$$c_0 = \omega / \|\vec{k}\| = \sqrt{\frac{1}{\varepsilon_0 \mu_0}} \simeq 3 \cdot 10^8 \text{ m s}^{-1}$$

où ε_0 et μ_0 sont la permittivité électrique et la perméabilité magnétique du vide.

On vérifie la relation

$$\vec{E}_0^c \cdot \vec{E}_0^{c\dagger} = \vec{E}^c \cdot \vec{E}^{c\dagger} = c_0^2 \vec{B}^c \cdot \vec{B}^{c\dagger} = c_0^2 \vec{B}_0^c \cdot \vec{B}_0^{c\dagger}$$

La densité d'énergie (J m^{-3}) est u

$$u = \frac{1}{2} \left(\varepsilon_0 \langle \vec{E}^2 \rangle + \frac{1}{\mu_0} \langle \vec{B}^2 \rangle \right) = \frac{\varepsilon_0}{2} \vec{E}_0^c \cdot \vec{E}_0^{c\dagger} = cte$$

Les moyennes $\langle \rangle$ sont effectuées ici sur le temps

$$\langle f \rangle_t := \frac{1}{2\Delta t} \int_{t-\Delta t}^{t+\Delta t} f(t') dt'$$

L'intensité lumineuse est I (W m^{-2}). L'énergie, d^2W , qui tombe sur l'élément de surface dS , normale au vecteur unitaire \vec{N} pendant le temps $dt \gg 2\pi/\omega$ est

$$d^2W = I \vec{N} \cdot \frac{\vec{k}}{\|\vec{k}\|} dS \text{ avec } I = c_0 u$$

13.1.2 Polarisation de l'onde

La **polarisation linéaire** correspond, par exemple, au cas $\vec{k} = (0, 0, 1)$ et $\vec{A}_0^c = A_0(1, 0, 0) := \vec{A}_0$ avec A_0 réel. En chaque point de l'espace \vec{A} et \vec{E} restent colinéaires au vecteurs $(1, 0, 0)$ tandis que \vec{B} est porté par le vecteur $(0, 1, 0)$. Ces vecteurs varient sinusoidalement avec une fréquence $\nu = 2\pi/\omega$:

$$\begin{aligned} \vec{A} &= \vec{A}_0 \cos(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r}) , \quad \vec{E} = \vec{E}_0 \sin(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r}) , \quad \vec{B} = \vec{B}_0 \sin(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r}) \\ \vec{E}_0 &= \omega \vec{A}_0 , \quad \vec{B}_0 = \vec{k} \wedge \vec{A}_0 = \frac{1}{\omega} \vec{k} \wedge \vec{E}_0 , \quad \|\vec{B}_0\| = \|\vec{E}_0\| / c_0 \\ u &= \frac{\varepsilon_0}{2} \vec{E}_0^2 , \quad I = c_0 u \end{aligned} \tag{13.1}$$

La **polarisation circulaire** est obtenue, par exemple, pour $\vec{k} = (0, 0, 1)$ et $\vec{A}_0^c = A_0(1, i, 0)$ avec A_0 réel. Les composantes de \vec{A} sont

$$A_x = A_0 \cos(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r}) , \quad A_y = A_0 \sin(\omega t - \vec{k} \cdot \vec{r}) , \quad A_z = 0$$

En chaque point de l'espace, le vecteur \vec{A} conserve un module constant, mais il tourne autour de l'axe Oz avec la vitesse angulaire ω . Il en va de même des vecteurs \vec{E} et \vec{B} .

13.1.3 Ordres de grandeurs

Pour fixer les idées nous considérons l'onde précédente polarisée linéairement, supposée décrire le faisceau de lumière visible, $\omega \sim 3 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$, issu d'un laser de puissance $P = 1 \text{ W}$ et de section, S , de l'ordre de $10 \text{ mm}^2 = 10^{-5} \text{ m}^2$.

On en déduit les ordres de grandeurs suivants

$$\begin{aligned}\omega &\sim 3 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}, \quad \nu = \frac{\omega}{2\pi} \simeq 5 \cdot 10^{14} \text{ Hz}, \quad \lambda = c_0/\nu \simeq 0,6 \cdot 10^{-6} \text{ m} \\ I &= P/S = 10^5 \text{ W m}^{-2}, \quad u = I/c_0 \simeq 3 \cdot 10^{-4} \text{ J m}^{-3} \\ E_0 &= \sqrt{2u/\varepsilon_0} \simeq 8 \cdot 10^3 \text{ V m}^{-1}, \quad B_0 = E_0/c_0 \simeq 3 \cdot 10^{-5} \text{ T} = 0,3 \text{ G}\end{aligned}$$

Les dimensions atomiques, R_0 , n'excèdent pas quelques angström, par conséquent la longueur d'onde, λ est très supérieure à la dimension de l'atome et nous pouvons considérer en première approximation, que les champs électriques et magnétiques sont uniformes à l'échelle de l'atome.

La puissance des lasers est très variable. On peut émettre des impulsions d'énergie élevée (1 J) pendant une durée très courte (10^{-12} s = 1 ps). On peut ainsi atteindre des puissances supérieures au térawatt (1 TW = 10^{12} W) pendant un temps très court. Cependant de nombreux lasers émettent de façon continue une puissance qui n'excède pas quelques milliwatts.

La dimension du faisceau lumineux est également très variable selon les objectifs visés. Au moyen de systèmes optiques convenables, on peut élargir considérablement le faisceau ou au contraire focaliser la lumière. Dans ce dernier cas la nature ondulatoire de la lumière fixe une limite inférieure à la tache de diffraction dont l'aire minimale est de l'ordre de λ^2 .

Enfin, on dispose aujourd'hui de lasers très divers (lasers à gaz ou à solides, lasers à colorants, diode laser, etc.), couvrant une large gamme de fréquence (par exemple : $\lambda = 10,6 \mu\text{m}$ pour les lasers à CO_2 , $1,06 \mu\text{m}$ pour le Yag, 630 nm pour le laser He-Ne, etc.).

13.1.4 Hamiltonien à l'approximation dipolaire électrique

Considérons l'exemple déjà traité de l'atome alcalin à l'approximation du champ central (cf. section 5.2).

L'hamiltonien s'écrit

$$H = \frac{1}{2m_e} \left(\vec{p} - q_e \vec{A} \right)^2 + q_e \Phi + V(r)$$

avec, ici, $\Phi = 0$ (jauge de Coulomb). Dans les conditions considérées, il vient

$$H \simeq \frac{\vec{p}^2}{2m_e} + V(r) - \frac{q_e}{2m_e} \vec{L} \cdot \vec{B} - q_e \vec{r} \cdot \vec{E}$$

Pour estimer et comparer les contributions des deux derniers termes, nous posons $|\vec{r} \cdot \vec{E}| \sim R_0 \times c_0 \|\vec{B}\|$ et $\|\vec{L}\| \sim \hbar$.

Il vient $\left| \frac{q_e}{2m_e} \vec{L} \cdot \vec{B} \right| \sim \left| \frac{\hbar q_e}{2m_e} \right| \|\vec{B}\|$ et $|q_e \vec{r} \cdot \vec{E}| \sim |q_e R_0| \times c_0 \|\vec{B}\|$.

Avec $R_0 \sim 1 \text{ \AA}$, la relation $\frac{\hbar}{2m_e R_0 c_0} \sim 10^{-3}$ implique $\left| \frac{q_e}{2m_e} \vec{L} \cdot \vec{B} \right| \sim 10^{-3} |q_e \vec{r} \cdot \vec{E}|$.

L'approximation $H \simeq \frac{\vec{p}^2}{2m_e} + V(r) - q_e \vec{r} \cdot \vec{E}$ semble donc légitime dans le cas considéré ici. Rappelons cependant que c'est le terme $-\frac{q_e}{2m_e} \vec{L} \cdot \vec{B}$ qui est prépondérant dans les expériences de résonance magnétiques où le champ électrique est négligeable. Remarquons en outre que ces expériences mettent en jeu des champs de radiofréquences alors que nous considérons ici des fréquences beaucoup plus élevées, susceptibles de provoquer des transitions entre les niveaux d'énergie internes de l'atome.

Posons $q_e \vec{r} := \vec{D}$. Dans la suite, l'hamiltonien est pris sous la forme

$$H \simeq H_0 - \vec{D} \cdot \vec{E}(t) \quad (13.2)$$

où H_0 est l'hamiltonien de l'atome tandis que $-\vec{D} \cdot \vec{E}$ est la perturbation introduite par l'onde électromagnétique. Le champ électrique \vec{E} est supposé uniforme à l'échelle de l'atome. L'opérateur \vec{D} est l'opérateur dipolaire électrique ; c'est un opérateur vectoriel qui caractérise le système atomique considéré. L'approximation qui conduit à l'expression 13.2 est l'**approximation dipolaire électrique**.

A l'approximation dipolaire, la direction d'origine de l'onde électromagnétique n'intervient pas. Ainsi en décrivant l'absorption d'un photon nous ne pourrions pas prendre en compte le recul de l'atome.

Dans la suite, sauf mention explicite contraire, nous supposons que l'onde électromagnétique est sinusoïdale et polarisée linéairement :

$$\begin{aligned} \vec{E} &= (0, 0, E_0 \sin \omega t) \text{ avec } E_0 > 0 \text{ et } \omega > 0 \\ u &= \frac{\varepsilon_0}{2} E_0^2, \quad I = c_0 u = \frac{\varepsilon_0 c_0}{2} E_0^2 \end{aligned}$$

13.2 Règles de sélection

Considérons l'ECOC $\{H_0, \vec{J}^2, J_z\}$. Nous utilisons la base standard associée $|E, j, m\rangle$. L'hamiltonien d'interaction s'écrit

$$-\vec{D} \cdot \vec{E} = -E_0 \sin \omega t \times D_z$$

\vec{D} étant un opérateur vectoriel, $|a\rangle$ et $|b\rangle$ étant deux états atomiques de la base standard, les règles de sélection s'appliquent.

$$\begin{aligned} \langle a | D_z | b \rangle \neq 0 & \quad \text{seulement si} \quad m_a - m_b = 0 \\ & \quad \text{et} \quad j_a - j_b = \pm 1 \text{ ou } 0 \\ & \quad \text{à l'exclusion du cas} \quad j_a = j_b = 0 \\ |\langle a | D_x | b \rangle| = |\langle b | D_x | a \rangle| \neq 0 & \quad \text{seulement si} \quad |m_a - m_b| = 1 \\ |\langle a | D_y | b \rangle| = |\langle b | D_y | a \rangle| \neq 0 & \quad \text{seulement si} \quad |m_a - m_b| = 1 \end{aligned}$$

Par conséquent $\langle a | \vec{D} \cdot \vec{E} | b \rangle \neq 0 \Rightarrow \langle a | D_x | b \rangle = \langle a | D_y | b \rangle = 0$.

Il existe une autre règle de sélection, relative à la parité, qui mérite d'être explicitée.

Pour fixer les idées, considérons le cas de l'atome alcalin étudié ci-dessus. On définit l'opérateur parité P par son action sur la fonction d'onde :

$$|\psi\rangle = \iiint \psi(\vec{r}) |\vec{r}\rangle d^3r, \quad P|\psi\rangle = \iiint \psi(-\vec{r}) |\vec{r}\rangle d^3r$$

En coordonnées sphériques il vient

$$P\psi(r, \theta, \varphi) = \psi(r, \pi - \theta, \pi + \varphi)$$

On distingue les fonctions paires, fonctions propres de P pour la valeur propre $+1$ et les fonctions impaires associées à la valeur propre -1 . Les états quantiques correspondants sont des états pairs ou impaires. On vérifie aisément que P est hermitique et même observable, toute fonction se décomposant en effet en une somme de fonctions propres de P , sous la forme $\psi(\vec{r}) = \frac{1}{2}(\psi(\vec{r}) + \psi(-\vec{r})) + \frac{1}{2}(\psi(\vec{r}) - \psi(-\vec{r}))$.

On peut vérifier que $f(r)Y_\ell^m(\theta, \varphi)$ est fonction propre de P pour la valeur propre $(-1)^\ell$: On dit que la parité de l'état est $(-1)^\ell$.

De façon générale, on pose les définitions suivantes

$$\begin{aligned} A : \text{opérateur pair ssi} \quad AP - PA = 0 &\Leftrightarrow PA |\psi\rangle = AP |\psi\rangle \\ A : \text{opérateur impair ssi} \quad AP + PA = 0 &\Leftrightarrow PA |\psi\rangle = -AP |\psi\rangle \end{aligned}$$

Chacune des composantes de \vec{D} est un opérateur impair on dit que " \vec{D} est un opérateur impair".

Supposons que $|a\rangle$ et $|b\rangle$ soient de parité bien définie : $P|a\rangle = \alpha_a|a\rangle$ et $P|b\rangle = \alpha_b|b\rangle$ avec $|\alpha_a| = |\alpha_b| = 1$. Dans ces conditions $\langle a|\vec{D} \cdot \vec{E}|b\rangle \neq 0$ seulement si $\alpha_a = -\alpha_b$, c'est à dire si les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ sont de parités différentes.

En effet $\langle a|\vec{D} \cdot \vec{E} P|b\rangle = \alpha_b \langle a|\vec{D} \cdot \vec{E}|b\rangle$ et $\langle a|\vec{D} \cdot \vec{E} P|b\rangle = -\langle a|P\vec{D} \cdot \vec{E}|b\rangle$ (car les composantes de \vec{E} sont ici des scalaires tandis que \vec{D} est un opérateur impair). On en déduit $\langle a|\vec{D} \cdot \vec{E} P|b\rangle = -\alpha_a \langle a|\vec{D} \cdot \vec{E}|b\rangle$ et $(\alpha_b + \alpha_a) \langle a|\vec{D} \cdot \vec{E}|b\rangle = 0$. Ce qui démontre la relation $\langle a|\vec{D} \cdot \vec{E}|b\rangle \neq 0 \Rightarrow \alpha_a = -\alpha_b$.

Dans le cas des atomes alcalins, cette propriété conduit à la règle de sélection supplémentaire $(-1)^{\ell_a} = -(-1)^{\ell_b}$. Les seules possibilités, compatibles avec la règle de sélection en j sont donc $\ell_a - \ell_b = \pm 1$.

13.3 Atome à deux niveaux

Supposons que l'espace des états internes atomiques, accessibles soit un espace de dimension 2 dont une base orthonormale est $\{|a\rangle, |b\rangle\}$, constituée d'états de parité différentes, états propres de l'hamiltonien non perturbé :

$$H_0|a\rangle = \mathcal{E}_a|a\rangle, \quad H_0|b\rangle = \mathcal{E}_b|b\rangle \quad \text{avec } \mathcal{E}_b > \mathcal{E}_a$$

On pose en outre $\omega_0 = (\mathcal{E}_b - \mathcal{E}_a) / \hbar$.

Les éléments de matrice de l'hamiltonien d'interaction $(-\vec{D} \cdot \vec{E} = -(E_0 \sin \omega t) D_z)$ couplent des états de parités différentes ; les éléments de matrice $\langle a|\vec{D} \cdot \vec{E}|a\rangle$ et $\langle b|\vec{D} \cdot \vec{E}|b\rangle$ sont donc nuls, ce qui implique

$$-\vec{D} \cdot \vec{E} = -E_0 \sin \omega t \left(|a\rangle D_{ab} \langle b| + |b\rangle D_{ba} \langle a| \right)$$

avec $\langle a|D_z|b\rangle := D_{ab} = D_{ba}^\dagger$.

Nous développons $|\psi\rangle$:

$$|\psi\rangle = C_a(t) |a\rangle + C_b(t) |b\rangle$$

L'équation d'évolution, $i\hbar \frac{d|\psi\rangle}{dt} = H|\psi\rangle$, s'écrit

$$i\hbar \frac{dC_a}{dt} = \mathcal{E}_a C_a - E_0 D_{ab} \sin \omega t \cdot C_b, \quad i\hbar \frac{dC_b}{dt} = \mathcal{E}_b C_b - E_0 D_{ba} \sin \omega t \cdot C_a \quad (13.3)$$

Nous posons

$$C_a := \Lambda_a e^{-i\mathcal{E}_a t/\hbar}, \quad C_b := \Lambda_b e^{-i\mathcal{E}_b t/\hbar}$$

il vient

$$i\hbar \frac{d\Lambda_a}{dt} = -E_0 D_{ab} e^{-i\omega_0 t} \sin \omega t \cdot \Lambda_b, \quad i\hbar \frac{d\Lambda_b}{dt} = -E_0 D_{ba} e^{i\omega_0 t} \sin \omega t \cdot \Lambda_a$$

avec $\hbar\omega_0 := \mathcal{E}_b - \mathcal{E}_a$.

Si le système est initialement dans l'état $|a\rangle$, ces équations conduisent à la probabilité de transition par unité de temps $W_{a \rightarrow b}$. S'il est initialement dans l'état $|b\rangle$, c'est la probabilité $W_{b \rightarrow a}$ qui est mise en évidence :

$$W = W_{a \rightarrow b} = W_{b \rightarrow a} = \frac{\pi |E_0 D_{ba}|^2}{2\hbar^2} \delta(\omega - \omega_0) \quad (13.4)$$

Cette expression est similaire à l'expression obtenue en résonance magnétique sous réserve d'introduire la **pulsation de Rabi**, ω_1 :

$$\omega_1 = \frac{|E_0 D_{ba}|}{\hbar}$$

Une telle ressemblance n'est pas fortuite ; dans le cas général une forte analogie est présente entre les équations de la résonance magnétique et les équations considérées ici.

Remarquons que dans les expressions précédentes, D_{ba} peut être remplacé par $D_{ab} = D_{ba}^\dagger$ car seul le module de ces quantités est présent.

Supposons que l'atome est dans l'état $|a\rangle$ à l'instant initial, $t = 0$. En l'absence de perturbation, il vient $C_a = e^{-i\mathcal{E}_a t/\hbar}$. On en déduit l'équation

$$i\hbar \frac{dC_b}{dt} = \mathcal{E}_b C_b - E_0 D_{ba} \sin \omega t \cdot e^{-i\mathcal{E}_a t/\hbar}$$

Cette équation ne prend en compte ni la désexcitation spontanée, ni les phénomènes de relaxation (interactions avec le milieu environnant), qui ont pour effet de ramener C_b vers zéro. Dans ce cours, nous ne disposons pas des outils qui permettent de traiter rigoureusement la question, cependant pour décrire le phénomène de relaxation nous pouvons introduire un terme phénoménologique dans l'équation précédente :

$$i\hbar \left(\frac{dC_b}{dt} + \frac{C_b}{\tau} \right) = \mathcal{E}_b C_b - E_0 D_{ba} \sin \omega t \cdot e^{-i\mathcal{E}_a t/\hbar}$$

où τ est un temps de relaxation caractéristique du système étudié et de son environnement.

En régime stationnaire, pour $t \gg \tau$, il vient

$$C_b = i \frac{E_0 D_{ba}}{2\hbar} e^{-i\mathcal{E}_a t/\hbar} \left(\frac{e^{-i\omega t}}{\omega_0 - \omega - i/\tau} - \frac{e^{i\omega t}}{\omega_0 + \omega - i/\tau} \right)$$

C_b n'est pas négligeable pour $\omega \sim \omega_0$. Dans ces conditions le second terme est très inférieur au premier et il vient

$$C_b \simeq i \frac{E_0 D_{ba}}{2\hbar} e^{-i\mathcal{E}_a t/\hbar} \frac{e^{-i\omega t}}{\omega_0 - \omega - i/\tau}$$

que C_b soit négligeable ou non.

La transition $|a\rangle \rightarrow |b\rangle$ n'apparaît que pour $D_{ba} \neq 0$. Dans le cas contraire $C_b = 0$. Par conséquent si les états $|a\rangle$ et $|b\rangle$ ne satisfont pas les règles de sélections ci-dessus, aucune transition ne peut intervenir entre ces états : ce sont des "transitions interdites". En réalité elles sont interdites à l'approximation dipolaire électrique considérée. Il en va de même des transitions induites $|b\rangle \rightarrow |a\rangle$.

13.4 Polarisation électrique induite

On introduit la notation complexe suivante

$$\vec{E}^c = (0, 0, iE_0 e^{-i\omega t})$$

Le champ électrique physique est $\text{Re} \left[\vec{E}^c \right] = (0, 0, E_0 \sin \omega t)$.

La polarisation du milieu est $\langle \vec{D} \rangle = \langle \psi | \vec{D} | \psi \rangle$. L'opérateur vectoriel \vec{D} étant un opérateur impair, il vient

$$\langle \vec{D} \rangle = C_a^\dagger C_b \langle a | \vec{D} | b \rangle + \left(C_a^\dagger C_b \langle a | \vec{D} | b \rangle \right)^\dagger$$

Les résultats précédents montrent que les règles de sélection impliquent

$$\begin{aligned} \langle D_z \rangle &= C_a^\dagger C_b D_{ab} + (C_a^\dagger C_b D_{ab})^\dagger = \text{Re} \left[i \frac{E_0 |D_{ba}|^2}{\hbar} \frac{e^{-i\omega t}}{\omega_0 - \omega - i/\tau} \right] \\ \langle D_x \rangle &= \langle D_y \rangle = 0 \end{aligned} \quad (13.5)$$

On définit la polarisabilité atomique, α^c , et la susceptibilité diélectrique, χ_a^c , complexes :

$$\alpha^c := \frac{|D_{ba}|^2}{\hbar} \frac{1}{\omega_0 - \omega - i/\tau}, \quad \varepsilon_0 \chi_a^c := \alpha^c N_a$$

où N_a est la densité des atomes dans l'état $|a\rangle$.

Le moment dipolaire atomique induit, $\langle \vec{D}^c \rangle$, et la polarisation induite $\vec{p}_a^c = N_a \langle \vec{D}^c \rangle$, due aux atomes dans l'état $|a\rangle$, sont[†]

$$\langle \vec{D}^c \rangle = \alpha^c \vec{E}^c, \quad \vec{p}_a^c = \varepsilon_0 \chi_a^c \vec{E}^c \quad \text{avec} \quad \chi_a^c = N_a \frac{|D_{ba}|^2}{\varepsilon_0 \hbar} \frac{1}{\omega_0 - \omega - i/\tau}$$

Avec ces notations, le "vrai" moment dipolaire atomique, $\langle \vec{D} \rangle$, et la "vraie" polarisation physique \vec{p}_a sont

$$\langle \vec{D} \rangle = \text{Re} \left[\langle \vec{D}^c \rangle \right], \quad \vec{p}_a = \text{Re} \left[\vec{p}_a^c \right]$$

Un calcul analogue peut être mené (dans le cadre d'un modèle convenable) afin de déterminer la polarisation induite sur les atomes dans l'état $|b\rangle$. On admettra le résultat

$$\vec{p}_b^c = \varepsilon_0 \chi_b^c \vec{E}^c \quad \text{avec} \quad \chi_b^c = -N_b \frac{|D_{ba}|^2}{\varepsilon_0 \hbar} \frac{1}{\omega_0 - \omega - i/\tau}$$

La polarisation complexe du milieu est donc

$$\vec{p}^c = \vec{p}_a^c + \vec{p}_b^c = \varepsilon_0 \chi_{tr}^c \vec{E}^c \quad \text{avec} \quad \chi_{tr}^c = \chi_a^c + \chi_b^c$$

Ainsi, pénétrant dans un milieu où des systèmes atomiques sont dans l'état $|a\rangle$ en nombre N_a par unité de volume et dans l'état $|b\rangle$ en nombre N_b par unité de volume, une onde électromagnétique perturbe les systèmes atomiques et induit une polarisation[‡] du milieu, \vec{p}^c , qui dépend du temps.

[†]Nous admettons que les temps de relaxation de C_a et C_b sont pratiquement les mêmes.

[‡]La polarisation est le moment dipolaire par unité de volume.

Remarques : Le raisonnement précédent n'est acceptable que dans la mesure où N_a et N_b sont définis. Ce n'est généralement pas le cas en toute rigueur, un atome étant dans un état quantique superposition de $|a\rangle$ et $|b\rangle$ (c'est de cette superposition que provient le dipôle électrique). Cependant, dans le cadre d'une théorie de perturbation, on peut considérer que le milieu atomique est un mélange d'atomes, ceux qui sont dans un état perturbé de l'état $|a\rangle$ (en nombre N_a) et ceux qui sont dans un état perturbé de l'état $|b\rangle$ (en nombre N_b). Cette façon de traiter le problème conduit aux expressions précédentes et aux équations de la cinétique (cf. les équations ?? et 15.1 ci-dessous). Ces équations ne décrivent pas la totalité des mécanismes considérés mais restent cependant très utiles pour mettre en évidence et expliquer de nombreux phénomènes.

La polarisation complexe du milieu est l'outil essentiel qui va décrire le mécanisme d'amplification et expliquer pourquoi l'onde amplifiée est en accord de phase avec l'onde initiale, cependant de nombreuses sources de dépolarisation existent. Par exemple, dans un gaz, lors de collisions entre molécules, les systèmes atomiques sont soumis à des champs électriques éphémères qui modifient leur état quantique en introduisant dans C_a et C_b des termes de phase aléatoires. Après un certain temps le moment dipolaire de l'atome devient lui-même aléatoire. Sa moyenne par unité de volume est alors nulle, de même que la polarisation. Ce phénomène de relaxation affecte aussi bien les atomes dans l'état $|a\rangle$ que dans l'état $|b\rangle$. Tout se passe alors comme si les atomes "sortaient" progressivement du système, en cessant de contribuer au phénomène de polarisation.

Il est possible de comparer le temps de relaxation τ et la constante de temps de désexcitation spontanée t_{sp} . La relaxation des atomes dans l'état $|b\rangle$, se traduit par le fait que certains atomes quittent l'état $|b\rangle$. L'une des causes en est la désexcitation spontanée mais ce n'est pas la seule (sauf dans les milieux gazeux très dilués). De façon générale, il vient donc $t_{sp} \gg \tau$.

13.5 Indice complexe d'un milieu

Considérons un milieu non magnétique isotrope, dont la susceptibilité diélectrique est χ_0 , un verre par exemple. On dope ce milieu avec certains atomes dont la susceptibilité est χ_{tr}^c . La polarisation du milieu est

$$\begin{aligned}\vec{p}^c &= \varepsilon_0 (\chi_0 + \chi_{tr}^c) \vec{E}^c \text{ avec} \\ \chi_{tr}^c &= (N_a - N_b) \frac{|D_{ba}|^2}{\varepsilon_0 \hbar} \frac{1}{\omega_0 - \omega - i/\tau} := \chi' + i\chi''\end{aligned}$$

De façon générale on pose

$$\varepsilon_0 \vec{E} + \vec{p} = \varepsilon \varepsilon_0 \vec{E}$$

L'indice, n , est alors égal à $\sqrt{\varepsilon}$. Ici $\varepsilon^c = 1 + \chi_0 + \chi_{tr}^c$: le milieu présente un indice complexe, n^c . L'onde sinusoïdale, polarisée linéairement, qui se propage suivant Ox présente un champ électrique complexe

$$\vec{E}^c = \vec{E}_0^c e^{-i\omega(t - n^c x/c_0)}$$

Il vient $\varepsilon_0 \vec{E}^c + \varepsilon_0 (\chi_0 + \chi_{tr}^c) \vec{E}^c = (n^c)^2 \varepsilon_0 \vec{E}^c$. Posons $n = \sqrt{1 + \chi_0}$; c'est l'indice de la matrice en l'absence de dopage. En supposant $|\chi_{tr}^c| \ll 1$ on trouve

$$\begin{aligned}n^c &= n + n' + in'' \text{ avec } n = \sqrt{1 + \chi_0} \\ n' &= \frac{1}{2n} \operatorname{Re}[\chi_{tr}^c], \quad n'' = \frac{1}{2n} \operatorname{Im}[\chi_{tr}^c]\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
n' &= \frac{1}{2n} (N_a - N_b) \frac{|D_{ba}|^2}{\hbar \varepsilon_0} \frac{\omega_0 - \omega}{(\omega_0 - \omega)^2 + 1/\tau^2} \\
n'' &= \frac{1}{2n} (N_a - N_b) \frac{|D_{ba}|^2}{\hbar \varepsilon_0} \frac{1/\tau}{(\omega_0 - \omega)^2 + 1/\tau^2}
\end{aligned} \tag{13.6}$$

Nous représentons ci-dessous les graphes des fonctions $n'(\omega)$ et $n''(\omega)$

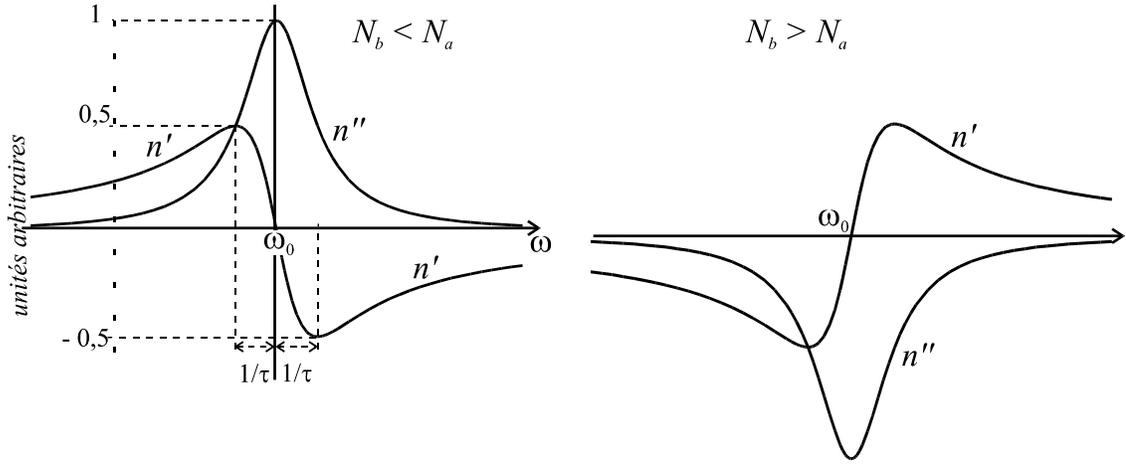


fig. 1

Dans un gaz ($n \simeq 1$) il vient

$$\vec{E}^c = \vec{E}_0^c e^{-n'' \omega x / c_0} e^{-i\omega(t-x/c')} \text{ avec } c' \simeq c_0 / (1 + n')$$

La vitesse de phase est un peu modifiée ($c_0 \rightarrow c'$) mais la différence des phases à deux instants quelconques, t_1 et t_2 , en un point d'abscisse, x , donné reste celle de l'onde incidente : la cohérence temporelle est maintenue.

Pour $\omega = \omega_0$, il vient $c' = c_0$. La phase est en chaque point celle que présenterait l'onde incidente en l'absence de milieu atomique. Cependant l'amplitude complexe varie avec la position. Il en est de même de l'intensité de l'onde :

$$I = \frac{\varepsilon_0 c_0}{2} \vec{E}_0^c \cdot \vec{E}_0^{c\dagger} = I_0 e^{\gamma x} \text{ avec } \gamma = -2n'' \omega / c_0 \tag{13.7}$$

sous forme différentielle, la relation précédente s'écrit

$$\frac{dI}{I} = \gamma dx \tag{13.8}$$

γ est le **"gain linéaire"** en énergie ; il s'exprime en m^{-1} .

A l'équilibre thermodynamique il vient $\mathcal{E}_a < \mathcal{E}_b \Rightarrow N_a > N_b$ ce qui implique $n'' > 0$ et $\gamma < 0$. L'intensité de l'onde diminue en progressant dans le milieu (*i.e.* lorsque x croît l'absorption augmente).

Par contre si on réalise une inversion de population, $N_a < N_b$, l'onde s'amplifie en progressant dans le milieu. Ce mécanisme permet d'amplifier la lumière tout en conservant la répartition de phase que l'on rencontre dans l'onde que l'on amplifie.

Nous poursuivons en considérant le cas d'un milieu gazeux assez dilué pour que l'on puisse poser $n = 1$.

13.6 Les coefficients A et B d'Einstein

Nous considérons une population d'atomes à deux niveaux non dégénérés à l'équilibre thermodynamique à la température T . Les populations des niveaux satisfont donc la relation

$$\frac{N_b}{N_a} = e^{-(\mathcal{E}_b - \mathcal{E}_a)/k_B T}$$

où N_a (resp. N_b) est le nombre d'atomes par unité de volume dans l'état $|a\rangle$ (resp. $|b\rangle$).

Ces atomes sont soumis au rayonnement électromagnétique de l'équilibre thermodynamique à la température T . La densité spectrale, ρ , d'un tel rayonnement est donnée par la formule de Planck :

$$\rho = \frac{8\pi\nu^2}{c_0^3} \times h_P \nu \times \frac{1}{e^{h_P \nu / k_B T} - 1}$$

où $h_P = 2\pi\hbar$ est la constante de Planck.

Atomes et rayonnement interagissent sans que ne soit rompu l'équilibre thermodynamique. Einstein imagine trois processus possibles, compatibles avec la conservation de l'énergie :

1. la désexcitation spontanée de $|b\rangle$ vers $|a\rangle$ (avec émission d'un photon), caractérisée par une probabilité par unité de temps notée A ;
2. l'excitation due à la présence du rayonnement qui, par absorption d'un photon, fait passer certains atomes de $|a\rangle$ vers $|b\rangle$, la probabilité par unité de temps étant notée $B_+ \times \rho(\nu_0)$ où ν_0 est la fréquence de transition ($h_P \nu_0 := \mathcal{E}_b - \mathcal{E}_a$);
3. le troisième phénomène qui n'est pas exclu par le principe de la conservation de l'énergie est un mécanisme nouveau pour l'époque (1917) dont Einstein imagine l'existence : la désexcitation stimulée par la présence du rayonnement électromagnétique, caractérisée par une probabilité par unité de temps $B_- \times \rho(\nu_0)$; lors de cette transition, l'atome passe de l'état $|b\rangle$ à l'état $|a\rangle$ tandis qu'un photon est émis[§].

Les équations qui régissent l'évolution des populations sont

$$\begin{aligned} dN_a &= B_- \rho(\nu_0) N_b dt + A N_b dt - B_+ \rho(\nu_0) N_a dt \\ dN_b &= B_+ \rho(\nu_0) N_a dt - A N_b dt - B_- \rho(\nu_0) N_b dt \end{aligned}$$

A l'équilibre thermodynamique un régime stationnaire s'établit : $dN_a = dN_b = 0$; il vient

$$B_- \rho(\nu_0) N_b + A N_b - B_+ \rho(\nu_0) N_a = 0 \text{ avec } \frac{N_b}{N_a} = e^{-h_P \nu_0 / k_B T}$$

où ρ est donné par la formule de Planck ci-dessus. Les relations d'équilibre thermodynamique doivent être satisfaites à toutes températures, T . On en déduit les relations suivantes (voir le cours de Licence ou la bibliographie)

$$B_+ = B_- := B, \quad B = \frac{c_0^3}{8\pi h_P \nu_0^3} A = \frac{\pi c_0^3}{2\hbar \omega_0^3} A$$

avec $\hbar := \frac{h_P}{2\pi}$ et $h_P \nu_0 = \hbar \omega_0 := \mathcal{E}_b - \mathcal{E}_a$.

[§]A la différence du processus 1, spontané, les processus 2 et 3 disparaissent pour $\rho = 0$: ce sont donc des processus induits par le rayonnement.

La désexcitation stimulée apparaît comme une nécessité, compte tenu des théories existantes, bien vérifiées par ailleurs (thermodynamique) et du phénomène de désexcitation spontané ($A \neq 0$). Aucune explication du mécanisme n'est cependant proposée par d'Einstein. La présente théorie de l'atome à deux niveaux soumis à une onde électromagnétique fournit l'explication manquante et permet d'exprimer les coefficients d'Einstein au moyen des éléments de matrice D_{ab} .

Si l'on tient compte de la relaxation, l'expression 13.4 de W est modifiée comme en résonance magnétique

$$W_{a \rightarrow b} = W_{b \rightarrow a} = W = \frac{\pi}{2\hbar^2} |E_0 D_{ab}|^2 f(\omega - \omega_0) \text{ avec } \int f(\omega - \omega_0) d\omega = 1 \quad (13.9)$$

L'allure de la fonction f est donnée ci dessous

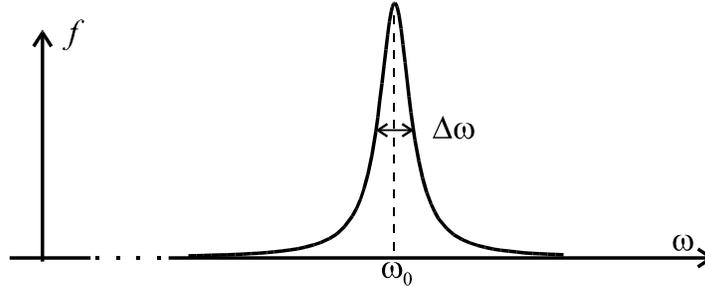


fig. 2

L'étude précédente concerne un système à deux niveaux dont nous avons supposé que les énergies ne sont pas dégénérées. Si \mathcal{E}_a et \mathcal{E}_b admettent des dégénérescences d'ordre d_a et d_b , les probabilités de transition entre niveaux d'énergie sont modifiées. On démontre

$$d_a W_{a \rightarrow b} = d_b W_{b \rightarrow a}$$

Nous poursuivrons dans le cas non dégénéré.

Introduisons la densité d'énergie $u = \varepsilon_0 E_0^2 / 2$ (¶). L'expression 13.9 s'écrit

$$W = \frac{\pi}{\varepsilon_0 \hbar^2} |D_{ab}|^2 f(\omega - \omega_0) \times u$$

Nous considérons un rayonnement constitué d'une multitude de raies monochromatiques de pulsation ω_k , séparées par l'intervalle $\delta\omega$, de densité d'énergie u_k , variant lentement avec k . Ce spectre est supposé large, beaucoup plus que $\Delta\omega$.

¶Rappelons que nous considérons un champ électrique polarisé suivant Oz avec $E_z = E_0 \sin \omega t$.

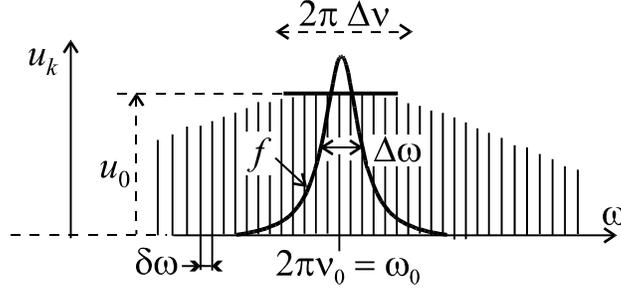


fig.3

La probabilité totale de transition est la somme des probabilités dues à chacune des raies.

$$W_{tot} = \sum_k \frac{\pi}{\varepsilon_0 \hbar^2} |D_{ab}|^2 f(\omega_k - \omega_0) \times u_k$$

Seules les valeurs $\omega_k \simeq \omega_0$ contribuent à la somme (pour $|\omega_k - \omega_0| \gtrsim \Delta\omega$, la quantité $f(\omega_k - \omega_0)$ est pratiquement nulle). On note u_0 la valeur de u_k pour $\omega_k \simeq \omega_0$ (on peut en effet considérer que u_k ne dépend pas de k pour $\omega_k \simeq \omega_0$ car u_k est lentement variable). On trouve

$$W_{tot} = u_0 |D_{ab}|^2 \frac{\pi}{\varepsilon_0 \hbar^2} \frac{1}{\delta\omega} \sum_k f(\omega_k - \omega_0) \delta\omega$$

En remplaçant la somme par une intégrale il vient

$$\sum_k f(\omega_k - \omega_0) \delta\omega \simeq \int f(\omega - \omega_0) d\omega = 1 \implies$$

$$W_{tot} = u_0 |D_{ab}|^2 \frac{\pi}{\varepsilon_0 \hbar^2} \frac{1}{\delta\omega}$$

La densité d'énergie dans la largeur de bande $\Delta\nu \gg \frac{\delta\omega}{2\pi}$ est $\rho(\nu) \Delta\nu$ où $\rho(\nu)$ est par définition la densité spectrale du rayonnement considéré. Le nombre de raies dans la largeur $\Delta\nu$ est $2\pi\Delta\nu/\delta\omega$. Au voisinage de $\nu_0 = \frac{\omega_0}{2\pi}$, la densité d'énergie est donc $u_0 \times 2\pi\Delta\nu/\delta\omega$. On en déduit la relation $u_0 \times 2\pi\Delta\nu/\delta\omega = \rho(\nu_0) \Delta\nu$.

Le coefficient B est défini par la relation $W_{tot} = B\rho(\nu_0)$. Bien que le mécanisme d'émission stimulée ait été mis en évidence lors de l'étude de l'équilibre thermodynamique, c'est un mécanisme général caractérisé par une probabilité par unité de temps, $W_{tot} = B\rho(\nu_0)$ où B est une caractéristique de l'atome considéré :

$$W_{tot} = u_0 |D_{ab}|^2 \frac{\pi}{\varepsilon_0 \hbar^2} \frac{1}{\delta\omega} = B\rho(\nu_0) \text{ avec } u_0 \times 2\pi/\delta\omega = \rho(\nu_0)$$

On en déduit

$$B = \frac{|D_{ab}|^2}{2\varepsilon_0 \hbar^2} = \frac{\pi c_0^3}{2\hbar\omega_0^3} A \quad (13.10)$$

On pose $A = 1/t_{sp}$ où t_{sp} est la constante de temps de désexcitation spontanée. Dans les diverses expressions utilisées par la suite, nous remplacerons $|D_{ab}|$ par son expression en fonction de $A = 1/t_{sp}$. Ainsi, la probabilité de transition par unité de temps s'écrit

$$W = \frac{\pi^2 c_0^3}{\hbar\omega_0^3} \cdot \frac{1}{t_{sp}} \cdot f(\omega - \omega_0) \times u$$

où u est la densité d'énergie électromagnétique à la pulsation ω .

13.7 Détermination du facteur de forme, $f(\omega - \omega_0)$.

Considérons un petit cylindre d'axe Ox , compris entre x et $x + dx$ et de section S .

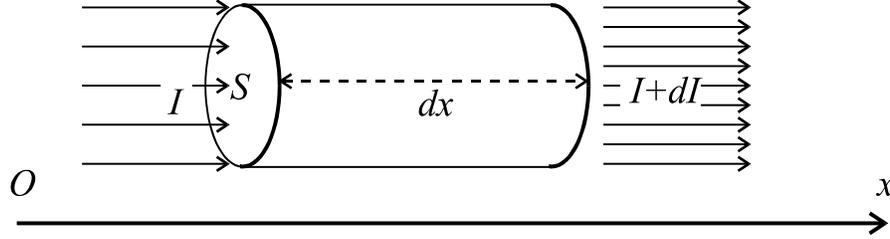


fig.4

Pendant le temps dt ; le nombre d'atomes de ce cylindre qui émettent un photon par émission stimulée est $N_b S dx W dt$. Le nombre d'atomes qui absorbent un photon est $N_a S dx W dt$. L'énergie émise est donc $\hbar \omega W (N_b - N_a) S dx dt$. Cette énergie produit un accroissement de l'intensité lumineuse $dI = \gamma I dx$ (voir la relation 13.8). On obtient

$$\hbar \omega W (N_b - N_a) S dx dt = \gamma I dx S dt$$

On utilise les relations 13.7 et 13.1 :

$$\gamma = -2n''\omega/c_0 \text{ et } I = c_0 \varepsilon_0 E_0^2 / 2$$

ainsi que l'expression 13.6 de n'' et l'expression 13.9 de W :

$$n'' = \frac{1}{2} (N_a - N_b) \frac{|D_{ba}|^2}{\hbar \varepsilon_0} \frac{1/\tau}{(\omega - \omega_0)^2 + 1/\tau^2}$$

$$W = \frac{\pi}{2\hbar^2} |E_0 D_{ab}|^2 f(\omega - \omega_0)$$

On obtient

$$f(\omega - \omega_0) = \frac{1}{\pi \tau} \frac{1}{(\omega - \omega_0)^2 + 1/\tau^2}$$

Cette fonction est représentée fig.2; c'est une lorentzienne, type de fonctions déjà rencontré à diverses reprises. Elle est non négligeable pour $|\omega - \omega_0| \lesssim 1/\tau$. Ainsi la largeur de la bande passante (absorption et émission) est-elle de l'ordre de $\Delta\omega \sim 2/\tau$.

Dans l'étude précédente, tous les atomes présentent la même forme de raie caractérisée par la fonction $f(\omega - \omega_0)$. On dit que la courbe de gain est homogène.

Par contre, si on considère les atomes d'un gaz soumis à l'agitation thermique, il ont tous des vitesses différentes. A cause de l'effet Doppler, ils absorbent des photons de fréquences différentes. C'est à dire que la fréquence centrale de la raie associée à un atome dépend de la vitesse de cet atome. La largeur de la courbe de gain est dite "hétérogène". Lorsqu'elle est dominée par l'agitation thermique, la largeur de la courbe de gain est de

l'ordre de $\omega_0 \sqrt{\frac{2k_B T}{mc_0^2}}$ où m est la masse des atomes.

La largeur de la courbe de gain peut avoir diverses origines : désexcitation spontanée naturelle du niveau excité, collisions entre molécules et atomes dans les gaz ou avec les phonons thermiques de la matrice dans les solides, élargissement thermique due à la dispersion des vitesses sous l'effet du mouvement brownien, etc .

13.8 Saturation de la transition atomique

Dans les calculs précédents nous avons supposé soit $|C_a| \simeq 1$ et $|C_b| \ll 1$ (atomes dans l'état $|a\rangle$) soit $|C_a| \ll 1$ et $|C_b| \simeq 1$ (atomes dans l'état $|b\rangle$). Ceci n'est vrai que si l'intensité du champ lumineux reste inférieure à l'intensité de saturation I_{sat} .

Considérons l'expression 13.5 ci dessus :

$$\begin{aligned} \langle D_z \rangle &= \langle \psi | D_z | \psi \rangle = C_a^\dagger C_b D_{ab} + (C_a^\dagger C_b D_{ab})^\dagger \quad \text{avec} \\ |C_a|^2 + |C_b|^2 &= 1 \quad (\text{relation de normalisation}) \end{aligned}$$

Posons $C_a = |C_a| e^{i\theta_a}$, $C_b = |C_b| e^{i\theta_b}$ et $D_{ab} = |D_{ab}| e^{i\theta}$. Il vient

$$|\langle \psi | D_z | \psi \rangle| = 2 |D_{ab}| |C_a| |C_b| |\cos(\theta + \theta_b - \theta_a)| \leq 2 |D_{ab}| |C_a| |C_b|$$

Compte tenu de la relation de normalisation, cette expression est maximale pour $|C_a|^2 = |C_b|^2 = 1/2$. Cela signifie que dans une mesure on trouverait autant d'atomes dans l'état $|a\rangle$ que dans l'état $|b\rangle$. La polarisation du milieu est alors maximale, le milieu est dit "saturé". La saturation correspond ici à une polarisation électrique maximale du milieu, $|\langle D_z \rangle| \simeq |D_{ab}|$, de même que la saturation d'un milieu magnétique correspond à une polarisation magnétique maximale.

13.9 Conclusion

Nous résumons l'ensemble des relations obtenues en considérant le cas plus général où les systèmes atomiques dopent un milieu isotrope, non magnétique, d'indice n . La célérité de la lumière dans le vide est notée c_0 . Dans les diverses formules nous utilisons la fréquence, ν , ainsi que la pulsation $\omega = 2\pi\nu$. Par mesure de simplicité, le facteur de forme est noté $f(\omega)$ et non plus $f(\omega - \omega_0)$.

Les principaux résultats sont donnés ci-dessous :

u : densité d'énergie (en J m^{-3})	I : intensité (en W m^{-2})	$I = u \cdot c_0/n$
énergie des niveaux $ a\rangle$ et $ b\rangle$	\mathcal{E}_a et \mathcal{E}_b	$\hbar\omega_0 = \mathcal{E}_b - \mathcal{E}_a$
Densité d'atomes dans les états $ a\rangle$ et $ b\rangle$	N_a et N_b	en m^{-3}
coefficient A d'Einstein	$A = 1/t_{sp}$	en s^{-1}

Facteur de forme, $f(\omega)$ ou $g(\nu)$ (en s ou en Hz^{-1})

facteur de forme :	$g(\nu) = 2\pi f(\omega) _{\omega=2\pi\nu} \geq 0$
largeur de la courbe de gain :	$\Delta\omega = \frac{2}{\tau} = 2\pi\Delta\nu$, $\Delta\omega$ en s^{-1} et $\Delta\nu$ en Hz
Propriétés et approximations :	$\int g(\nu) d\nu = \int f(\omega) d\omega = 1$
$g(\nu) \sim \begin{cases} 1/\Delta\nu & \text{pour } \nu - \nu_0 \lesssim \Delta\nu/2 \\ 0 & \text{pour } \nu - \nu_0 \gtrsim \Delta\nu/2 \end{cases}$	$f(\omega) \sim \begin{cases} 1/\Delta\omega & \text{pour } \omega - \omega_0 \lesssim \Delta\omega/2 \\ 0 & \text{pour } \omega - \omega_0 \gtrsim \Delta\omega/2 \end{cases}$

Les approximations précédentes sont de nature numérique. Elles permettent seulement d'obtenir les ordres de grandeur des diverses quantités physiques à estimer.

Les fonctions $g(\nu)$ et $f(\omega)$ sont des fonctions centrées respectivement sur les valeurs ν_0 et $\omega_0 = 2\pi\nu_0$:

$$\hbar\omega_0 = \mathcal{E}_b - \mathcal{E}_a, \quad \omega_0 = 2\pi\nu_0$$

La raie étant généralement étroite, on utilise les approximations suivantes :

$$\omega^N f(\omega) \simeq \omega_0^N f(\omega) \quad \text{et} \quad \nu^N g(\nu) \simeq \nu_0^N g(\nu) \quad \text{pour} \quad |N| = 1 \text{ à } 3.$$

Largeur homogène

$$\text{Lorentzienne : } f(\omega) = \frac{1}{\pi\tau} \frac{1}{(\omega - \omega_0)^2 + 1/\tau^2}; \quad g(\nu) = \frac{\Delta\nu}{2\pi} \frac{1}{(\nu - \nu_0)^2 + (\Delta\nu/2)^2}$$

avec $\pi\Delta\nu = \frac{1}{\tau}$
demi largeur à mi-hauteur pour f : $1/\tau = \Delta\omega/2$, pour g : $\Delta\nu/2$

Susceptibilité complexe, χ_{tr}^c , et indice complexe, n^c (largeur de raie homogène)

$$n^c = n + n' + in'' = \sqrt{\varepsilon^c}, \quad \chi_{tr}^c = \chi' + i\chi''$$

$$\vec{p}^c = \varepsilon_0(\chi_0 + \chi_{tr}^c) \vec{E}^c, \quad \varepsilon_0 \vec{E}^c + \vec{p}^c = \varepsilon^c \varepsilon_0 \vec{E}^c$$

$$n' = \frac{\chi'}{2n}, \quad n'' = \frac{\chi''}{2n}$$

$$\chi' = \tau(\omega_0 - \omega) \chi'' = \frac{\nu_0 - \nu}{\Delta\nu/2} \chi''$$

$$\chi'' = (N_a - N_b) \frac{c_0^3 \pi^2}{\omega_0^3} \cdot \frac{1}{n} \cdot \frac{1}{t_{sp}} \cdot f(\omega) = (N_a - N_b) \frac{c_0^3}{16\pi^2 \nu_0^3} \cdot \frac{1}{n} \cdot \frac{1}{t_{sp}} \cdot g(\nu)$$

Gain linéaire en intensité, γ (en m^{-1}) : $dI = \gamma I dx$

$$\gamma = (N_b - N_a) \frac{c_0^2 \pi^2}{\omega_0^2} \cdot \frac{1}{n^2} \cdot \frac{1}{t_{sp}} \cdot f(\omega) = (N_b - N_a) \frac{c_0^2}{8\pi\nu_0^2} \cdot \frac{1}{n^2} \cdot \frac{1}{t_{sp}} \cdot g(\nu) \quad (13.11)$$

$$n'' = -\frac{c_0 \gamma}{2\omega} = -\frac{c_0 \gamma}{4\pi\nu}, \quad n' = \tau(\omega_0 - \omega) n'' = \frac{\nu_0 - \nu}{\Delta\nu/2} n'' \quad (13.12)$$

Probabilité de transition par unité de temps, W (en s^{-1})

$$\begin{aligned} \text{transitions stimulées : } & dN_{a \rightarrow b} = N_a W dt & dN_{b \rightarrow a} = N_b W dt \\ \text{transitions spontanées } & dN_a = -dN_b = N A dt & \text{avec } A = 1/t_{sp} \end{aligned}$$

$$W = \frac{\pi^2 c_0^3}{\hbar \omega_0^3} \cdot \frac{1}{n^3} \cdot \frac{1}{t_{sp}} \cdot f(\omega) \times u = \frac{c_0^3}{16\pi^2 \hbar \nu_0^3} \frac{1}{n^3} \cdot \frac{1}{t_{sp}} \cdot g(\nu) \times u \quad (13.13)$$

$$u = nI/c_0 \text{ pour une onde progressive, et } W = \frac{\gamma I}{\hbar \omega (N_b - N_a)}$$

Remarquons que W est positif, indépendant des populations des divers niveaux.

Ordres de grandeurs

En 1954, le premier maser qui fonctionna fut un maser à ammoniac (NH_3), à une fréquence voisine de 24 GHz. Dans le domaine optique, le premier laser fut un laser à rubis (Maiman 1960). Le rubis est constitué d'une matrice d'alumine (Al_2O_3) dopée par des ions chrome (Cr^{3+}). Il présente les caractéristiques suivantes :

$\Delta\nu \simeq 2 \cdot 10^{11}$ Hz à $T = 300$ K , $t_{sp} \simeq 3 \cdot 10^{-3}$ s , $c = c_0/n \simeq 1,7 \cdot 10^8$ m s⁻¹ , $\nu_0 \simeq 4,3 \cdot 10^{14}$ Hz.

On réalise une inversion de population : $N_b - N_a \simeq 5 \cdot 10^{23}$ m⁻³. La relation 13.11 avec $\Delta\nu g(\nu) \sim 1$ pour pour $|\nu - \nu_0| \lesssim \Delta\nu/2$, permet d'estimer le gain linéaire, γ , au voisinage de la résonance:

$$\gamma \simeq (N_b - N_a) \frac{c_0^2}{8\pi\nu_0^2} \cdot \frac{1}{n^2} \cdot \frac{1}{t_{sp}} \cdot \frac{1}{\Delta\nu} \simeq 5 \text{ m}^{-1} = 0,05 \text{ cm}^{-1}$$

Le gain est 5% par centimètre : lorsque la lumière progresse, à chaque centimètre son intensité est multipliée par $e^{0,05} \simeq 1,05$.

On peut calculer n'' au voisinage de la résonance en utilisant 13.12 :

$$n''(\nu_0) \simeq -\frac{\gamma c_0}{4\pi\nu_0} \simeq -2,8 \cdot 10^{-7}$$

À la résonance, n' est nul, mais pour $\nu = \nu_0 + \Delta\nu/2$ on vérifie la relation $n'(\nu) = -n''(\nu_0)/2 = 1,4 \cdot 10^{-7}$. On en déduit la variation relative $(c' - c)/c$ où c est la vitesse de la lumière dans la matrice passive et c' la vitesse de la lumière lorsque l'inversion de population est réalisée.

$$c = c_0/n \text{ et } c' = c_0/(n + n') \Rightarrow \frac{c' - c}{c} \simeq -\frac{n'}{n} = -n' \frac{c}{c_0} \simeq -8 \cdot 10^{-8}$$

La vitesse de la lumière varie très peu lorsqu'on réalise une inversion de population. Nous résumons les résultats qualitatifs dans le tableau ci-dessous pour $\mathcal{E}_a < \mathcal{E}_b$

		cas où $\nu < \nu_0 \downarrow$	cas où $\nu > \nu_0 \downarrow$
$N_b > N_a :$	milieu amplificateur	$c' > c$	$c' < c$
$N_b < N_a :$	milieu absorbant	$c' < c$	$c' > c$

Connaissant l'intensité lumineuse, I , de l'ordre de 10^{-3} W mm⁻² = 1000 W m⁻², on peut également calculer la probabilité de transition stimulé par unité de temps en utilisant 13.13 :

$$W \simeq \frac{c_0^3}{16\pi^2 \hbar \nu_0^3} \cdot \frac{1}{n^3} \cdot \frac{1}{t_{sp}} \cdot \frac{1}{\Delta\nu} \times \frac{n I}{c_0} \sim 4 \cdot 10^{-2} \text{ s}^{-1}$$

Remarquons que W est très inférieur à la probabilité de désexcitation spontanée par unité de temps : $W \ll 1/t_{sp} \simeq 300 \text{ s}^{-1}$. En l'absence de tout phénomène supplémentaire, la cinétique de l'évolution des populations est donc dominée par la désexcitation spontanée. L'inversion de population disparaît donc très rapidement, en une durée qui n'excède pas une durée de l'ordre de t_{sp} . Pour maintenir le caractère amplificateur d'un milieu, il faut donc envisager de "pomper" en permanence les atomes de l'état fondamental vers l'état excité au moyen d'un dispositif convenable.

Divers effets. L'étude qui précède permet de comprendre les mécanismes qui conduisent à l'amplification d'une onde sans que sa phase ne soit modifiée. Cette étude est cependant incomplète dans la mesure où de nombreux phénomènes n'ont pas été pris en compte.

L'indice d'un milieu optique peut être, par exemple, une fonction non linéaire de l'intensité (c'est généralement le cas et, lorsque l'intensité lumineuse est élevée, le phénomène est sensible). Cette propriété peut engendrer des nuisances mais on peut également en tirer parti dans diverses applications.

Lorsque le milieu est excité par une onde de fréquence ν , la réponse du milieu (polarisation induite, indice) peut être décrite sous forme de développements de Fourier où apparaissent des fréquences multiples de ν . Cette réponse engendre des ondes lumineuses aux mêmes fréquences. On peut tirer parti de cette propriété pour doubler la fréquence de la lumière et atteindre ainsi des domaines de longueurs d'ondes plus courtes.

Pour terminer, remarquons que l'indice n'est pas toujours isotrope, dans les milieux cristallins par exemple.