SPECTROSCOPIE HERTZIENNE. — *Étude du pompage optique dans le formalisme de la matrice densité.* Note (*) de MM. **Jean-Pierre Barrat** et **Claude Cohen-Tannoudji**, présentée par M. Gustave Ribaud.

Des équations sont obtenues qui décrivent l'effet du cycle de pompage optique sur l'évolution de la matrice densité dans l'état fondamental.

L'évolution d'un ensemble d'atomes possédant une structure Zeeman dans l'état fondamental et éclairés par une source lumineuse émettant la raie de résonance convenablement polarisée a été étudiée ([1]).

La description complète de cet ensemble d'atomes dans l'état fondamental nécessite l'emploi d'une matrice densité, les éléments diagonaux de cette matrice représentant les populations des différents sous-niveaux Zeeman, les éléments non diagonaux la « cohérence » existant entre les différents couples de sous-niveaux ([2]). Nous étudions ici plus particulièrement l'effet du « cycle de pompage optique » sur la cohérence dans l'état fondamental.

Les notations sont les mêmes que dans la référence ([3]) μ, ω_f ou m, ω_0 désignent les sous-niveaux et les effets Zeeman dans l'état fondamental ou excité; k_0, Γ, ΔE, l'énergie, la largeur naturelle et la self-énergie du niveau excité. Les photons sont décrits par leur vecteur d'onde $\vec{k}$ et leur polarisation $\vec{e}_\lambda$. Le calcul est fait pour la transition $6\,{}^1S_0 - 6\,{}^3P_1$ des isotopes impairs du mercure. La généralisation au cas d'autres transitions dipolaires électriques est immédiate. Le couplage entre le rayonnement et l'atome est décrit par les éléments de matrice

$$(1)\qquad \begin{cases} \langle \mu \vec{k} \lambda \,|\, \mathcal{H}_I \,|\, m \rangle = A_k\, e^{-i\vec{k}.\vec{R}} \langle \mu \,|\, \vec{e}_\lambda . \vec{D} \,|\, m \rangle, \\ \langle \mu \,|\, \vec{e}_\lambda . \vec{D} \,|\, m \rangle = C_{11}(F, m; m-\mu, \mu) \langle \mu = 0 \,|\, \vec{e}_\lambda . \vec{D} \,|\, m_J = m-\mu \rangle_{I=0}, \end{cases}$$

$\vec{D}$ est l'opérateur moment dipolaire électrique. A_k dépend des fonctions d'ondes radiales de l'atome et est proportionnel à $1/\sqrt{k}$. $\vec{R}$ est le vecteur position de l'atome. $C_{11}(F, m; m-\mu, \mu)$ un cofficient de Clebsch-Gordon.

Le faisceau excitateur est décrit par un ensemble de N photons $\vec{k}_1, \ldots, \vec{k}_i, \ldots, \vec{k}_N$ (N très grand) ayant tous la même direction de propagation et la même polarisation $\vec{e}_{\lambda_0}$. La répartition en fréquence de ces N photons correspond au profil $u(k)$ de la raie excitatrice dont on suppose la largeur Δ grande devant ω_f, ω_0, Γ.

Les états de base du système sont de trois sortes; les états $|\mu\rangle$ correspondant à l'atome dans le sous-niveau μ en présence des N photons; les états $|m; -\vec{k}_i\rangle$ correspondant à l'absorption du photon $\vec{k}_i$; les états

$|\mu; -\vec{k}_i; \vec{k}, \lambda\rangle$ correspondant au retour à l'état fondamental avec émission du photon $\vec{k}$, $\vec{e}_\lambda$.

En développant le vecteur d'état du système suivant ces états de base et en passant en représentation d'interaction, on obtient les équations d'évolution suivantes qui décrivent les différentes étapes du cycle de pompage

$$(2\,a)\qquad i\dot{b}_\mu = \sum_{m,\vec{k}_i} \langle \mu \vec{k}_i \lambda_0 | \mathcal{H}'_\mathrm{I} | m \rangle b_{m-\vec{k}_i},$$

$$(2\,b)\qquad i\dot{b}_{m-\vec{k}_i} = \sum_{\mu'} \langle m | \mathcal{H}'_\mathrm{I} | \mu' \vec{k}_i \lambda_0 \rangle b_{\mu'} + \sum_{\mu'', \vec{k}, \lambda} \langle m | \mathcal{H}'_\mathrm{I} | \mu'' \vec{k} \lambda \rangle b_{\mu''-\vec{k}_i \vec{k}\lambda},$$

$$(2\,c)\qquad i\dot{b}_{\mu''-\vec{k}_i \vec{k}\lambda} = \sum_{m'} \langle \mu'' \vec{k} \lambda | \mathcal{H}'_\mathrm{I} | m' \rangle b_{m'-\vec{k}_i},$$

$$(2\,b,\ bis)\qquad i\dot{b}_{m-\vec{k}_i} = \sum_{\mu'} \langle m | \mathcal{H}'_\mathrm{I} | \mu' \vec{k}_i \lambda_0 \rangle b_{\mu'} - i\left(\frac{\Gamma}{2} + i\,\Delta\mathrm{E}\right) b_{m-\vec{k}_i}.$$

Suivant une méthode classique en électrodynamique quantique [4], l'équation (2 b, *bis*) est obtenue en éliminant $b_{\mu''-\vec{k}_i\vec{k}\lambda}$ entre (2 b) et (2 c).

Si, appliquant la même méthode, on élimine $b_{m-\vec{k}_i}$ entre (2 a) et (2 b, *bis*) on montre que, sous l'influence de l'excitation optique, l'état fondamental acquiert une largeur naturelle $1/\mathrm{T}_p$ et une self énergie $\Delta\mathrm{E}'$ données par l'expression

$$(3)\qquad \frac{1}{2\,\mathrm{T}_p} + i\,\Delta\mathrm{E}' = \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{u\,(k)\,|\mathrm{A}_k|^2\,dk}{\dfrac{\Gamma}{2} - i\,(k - k_0)}.$$

En termes de matrice densité, le processus d'excitation est décrit par

$$(4)\qquad \left\{ \begin{aligned} \frac{d\rho_{\mu\mu'}}{dt} &= -\left(\frac{1}{2\,\mathrm{T}_p} + i\,\Delta\mathrm{E}'\right) \sum_{\mu''} \mathrm{A}_{\mu\mu''}\,\rho_{\mu''\mu'}\,e^{i(\mu-\mu'')\omega_f t} \\ &\quad - \left(\frac{1}{2\,\mathrm{T}_p} - i\,\Delta\mathrm{E}'\right) \sum_{\mu''} \mathrm{A}_{\mu''\mu'}\,\rho_{\mu\mu''}\,e^{i(\mu''-\mu')\omega_f t}, \\ \mathrm{A}_{\mu\mu'} &= \sum_m \langle \mu | \vec{e}_{\lambda_0}.\vec{\mathrm{D}} | m \rangle \langle m | \vec{e}_{\lambda_0}.\vec{\mathrm{D}} | \mu' \rangle. \end{aligned} \right.$$

Pour décrire le processus de retombée, on exprime $b_{\mu''-\vec{k}_i\vec{k}\lambda}$ à partir des b_μ en éliminant $b_{m-\vec{k}_i}$ entre les équations (2). Puis on somme sur $\vec{k}_i$, $\vec{k}$, λ. Si la condition $\Gamma\mathrm{T}_p \gg 1$ est réalisée, on montre que le processus de retombée peut être décrit par les équations

$$(5)\qquad \left\{ \begin{aligned} \frac{d\rho_{\mu\mu'}}{dt} &= \frac{1}{\mathrm{T}_p} \sum_{\mu''\mu'''} \mathrm{A}^{\mu\mu'}_{\mu''\mu'''}\,\rho_{\mu''\mu'''}\,e^{i[(\mu-\mu')-(\mu''-\mu''')]\omega_f t}, \\ \mathrm{A}^{\mu\mu'}_{\mu''\mu'''} &= \sum_{\substack{m,m' \text{ tels que} \\ m-m'=\mu-\mu'}} \frac{\left\{ \begin{aligned} &\Gamma \langle m | \vec{e}_{\lambda_0}.\vec{\mathrm{D}} | \mu'' \rangle \langle \mu''' | \vec{e}_{\lambda_0}.\vec{\mathrm{D}} | m' \rangle \\ &\times \mathrm{C}_{11}(\mathrm{F}, m; m-\mu, \mu)\,\mathrm{C}_{11}(\mathrm{F}, m'; m'-\mu', \mu') \end{aligned} \right\}}{\Gamma + i\,[(\mu-\mu')\,\omega_0 - (\mu''-\mu''')\,\omega_f]}. \end{aligned} \right.$$

Pour avoir l'évolution globale dans l'état fondamental, il faut ajouter les vitesses de variation dues aux processus d'excitation et de retombée (4) et (5).

On obtient ainsi un système d'équations différentielles linéaires par rapport aux variables $\rho_{\mu\mu'}$. Les coefficients de ces variables sont des constantes d'ordre de grandeur $1/T_p$ multipliées par des exponentielles oscillant à des fréquences 0, ω_f, $2\,\omega_f$, ... On montre que si $\omega_f\, T_p \gg 1$, l'effet des termes oscillants est négligeable devant celui des termes séculaires. Les équations peuvent prendre alors la forme beaucoup plus simple

$$(6)\quad \frac{d\rho_{\mu\mu'}}{dt} = -\left[\frac{1}{2\,T_p}(A_{\mu\mu}+A_{\mu'\mu'}) + i\Delta E'(A_{\mu\mu}-A_{\mu'\mu'})\right]\rho_{\mu\mu'} + \frac{1}{T_p}\sum_{\substack{\mu''\,\mu'''\ \text{tels que}\\ \mu''-\mu'''=\mu-\mu'}} A^{\mu\mu'}_{\mu''\mu'''}\,\rho_{\mu''\mu'''}.$$

Les calculs précédents se généralisent au cas où, à l'action de l'excitation lumineuse, se superpose celle d'un champ de radiofréquence dont l'hamiltonien s'écrit dans le référentiel tournant

$$(7)\qquad \mathcal{H} = (\omega_f - \omega)\, I_z + \gamma\, H_1 I_x.$$

Les équations (6) restent valables à condition : *a.* d'y remplacer ω_f par la pulsation ω du champ de radiofréquence; *b.* de considérer $\rho_{\mu\mu'}$ comme la matrice densité dans le référentiel tournant et non plus en représentation d'interaction; *c.* de supposer $\omega_f/\gamma H_1 \gg 1$; *d.* d'ajouter enfin au second membre de (6) le terme $-i\,[\mathcal{H}, \rho]_{\mu\mu'}$ représentant l'action du champ de radiofréquence.

Les conséquences physiques des équations d'évolution (6) sont étudiées dans une prochaine publication. Un exposé plus détaillé des calculs précédents sera publié au *Journal de Physique*.

(*) Séance du 19 décembre 1960.

(1) A. Kastler, *J. Opt. Soc. Amer.*, 47, 1957, p. 460; J. Brossel, *Quantum Electronics* (édité par Ch. H. Townes. Columbia University Press), p. 82.

(2) C. Cohen-Tannoudji, *Suppl. Nuovo Cimento*, 1960 (sous presse).

(3) J.-P. Barrat, *Thèse*, Paris, 1959; *J. Phys. Rad.*, 20, 1959, p. 541, 633 et 657.

(4) W. Heitler, *The quantum theory of radiation*, 3e éd.

Extrait des *Comptes rendus des séances de l'Académie des Sciences*,
t. 252, p. 93-95, séance du 4 janvier 1961.

GAUTHIER-VILLARS,
55, Quai des Grands-Augustins, Paris (6e),
Éditeur-Imprimeur-Libraire.
158922

Imprimé en France.