

## Chapitre 5 : Interaction lumière-atomes

### Bibliographie :

Fundamentals of photonics / B.E.A. Saleh et M.C. Tech, en anglais

Optoélectronique / E. Rosencher et B. Vinter, en français

Lasers and electro-optics / C.C. Davis, en anglais

Principle of optics / M. Born et E. Wolf, en anglais

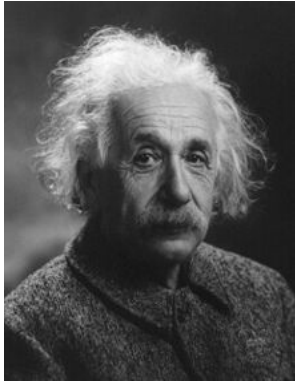
Plus avancé :

Quantum theory of light / R. Loudon

Electrodynamique et optique quantiques / F. Reuse

Note: certaines des figures du chapitre ont été copiées ou inspirées de ces références.

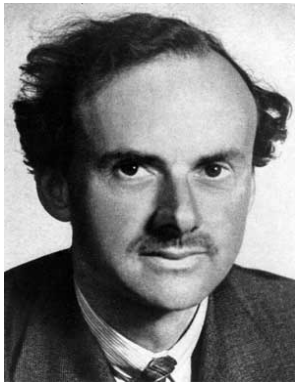
## Une page d'histoire



Albert Einstein 1879-1955  
Emission stimulée.



Niels Bohr 1885-1962  
Traitement quantique de  
l'interaction matière-rayonnement.



Paul Dirac 1902-1984  
Fondements de l'électrodynamique  
quantique, règle d'or de Fermi.



Edward Purcell 1912-1997  
Effet Purcell.



Enrico Fermi 1901-1954  
Règle d'or de Fermi.



Edwin Jaynes 1922-1998  
Modèle de Jaynes-Cummings.

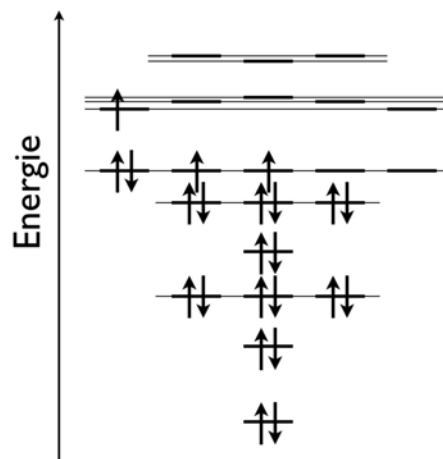
## 5.1 Introduction.

L'émission spontanée et l'absorption sont les deux mécanismes d'interaction entre la matière et la lumière dont nous avons l'expérience commune. En 1916, Einstein calculant l'équilibre thermodynamique entre les niveaux excités d'un atome placé dans ce même corps noir et le champ électromagnétique en présence est conduit à postuler l'existence d'un nouveau mécanisme d'émission lumineuse, l'émission stimulée. Ce qui donnera naissance cinquante ans plus tard au premier dispositif à émission stimulée, le maser dans les micro-ondes (1952-1954) et dans les longueurs d'ondes optiques en 1960 : le laser.

Au début du XX<sup>ème</sup> siècle, les nouveaux outils théoriques de l'électrodynamique quantique permettent de mieux comprendre ces mécanismes et de prédire les valeurs numériques de nombreux paramètres (temps de vie, force d'oscillateur, etc... ). Paradoxalement, alors que l'absorption et l'émission stimulée peuvent se comprendre dans le cadre d'une théorie semi-classique, l'émission spontanée se révélera être un effet complètement quantique.

## 5.2 Interaction entre une onde électromagnétique et un atome.

Le cours de mécanique quantique nous a appris que les états permis d'un atome sont constitués de niveaux énergétiques discrets



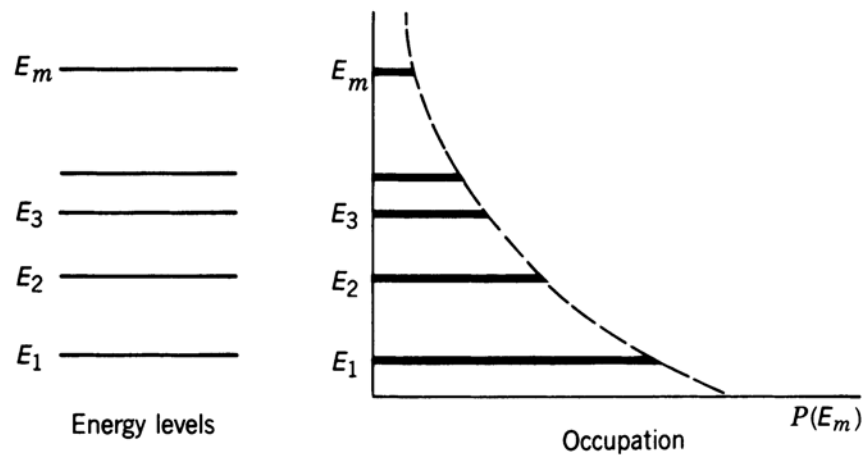
*Spectre des niveaux énergétiques d'un atome.*

qui sont peuplés par les électrons selon une statistique de Fermi-Dirac

$$f(E) = \frac{1}{e^{\frac{E-E_f}{k_B T}} + 1}$$

que l'on peut souvent approximer par une statistique de Maxwell-Boltzmann pour les couches supérieures quand  $E > E_f$ .

$$\frac{N_2}{N_1} = e^{\frac{-(E_2-E_1)}{k_B T}}$$



Statistique d'occupation.

Note : Plus rigoureusement il faut aussi tenir compte de la dégénérescence  $g_1$  et  $g_2$  des niveaux 1 et 2 :

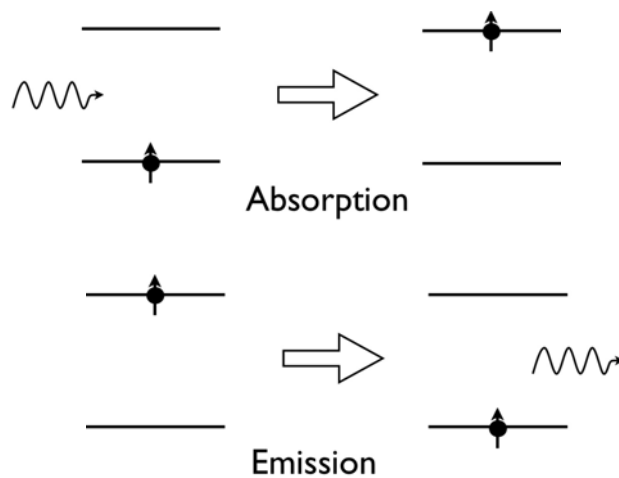
$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{g_2}{g_1} e^{-\frac{(E_2 - E_1)}{k_B T}}$$

L'expérience nous dit que de la lumière peut être émise ou absorbée par un atome. Nous avons vu que l'énergie lumineuse est quantifiée par quanta d'énergie  $\mathcal{E} = h\nu$ . Il est assez raisonnable de décrire l'émission ou l'absorption de lumière comme l'émission ou l'absorption d'un quanta d'énergie lumineuse. Cette énergie étant transférée à l'atome sous forme de la promotion d'un électron d'énergie  $E_1$  vers un état d'énergie  $E_2$ , par conservation de l'énergie :

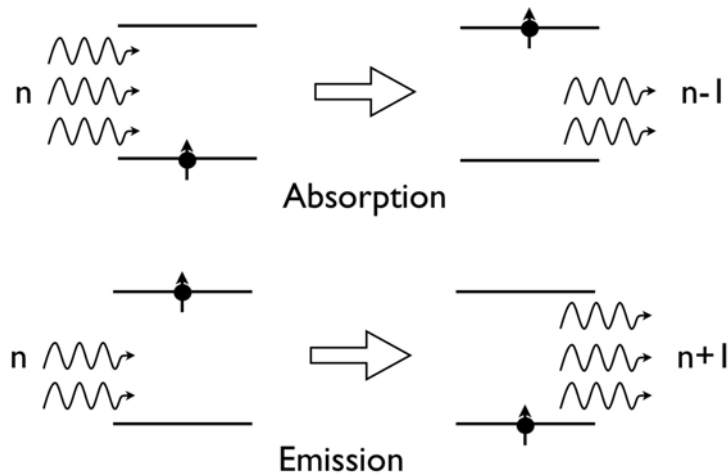
$$|E_2 - E_1| = h\nu$$

$E_2 > E_1$       absorption

$E_2 < E_1$       émission



ou plus généralement :



### 5.2.1 Emission spontanée.

Supposons un atome dans un état excité placé dans une cavité optique de volume  $V$ , grand. Grand ici signifie dont la distribution de modes est quasi-continue et la densité d'état est celle de l'espace vide  $\rho_{3D}(\nu) = \frac{8\pi\nu^2}{c^3}$ .

La densité de probabilité par unité de temps de désexcitation de l'atome dans un mode  $\nu$  donné est proportionnelle au recouvrement entre le mode et l'atome. Il doit donc être inversement proportionnelle au volume de la cavité :

$$P_{spont} = \frac{\Xi(\nu)}{V}$$

Pour des raisons pratiques qui apparaîtront plus tard on préfère écrire le coefficient de proportionnalité sous la forme  $c \cdot \sigma(\nu)$

$$P_{spont} = \frac{c}{V} \sigma(\nu) \quad [T]^{-1}$$

$\sigma$  a les dimensions d'une surface et s'appelle la *section efficace de la transition*.

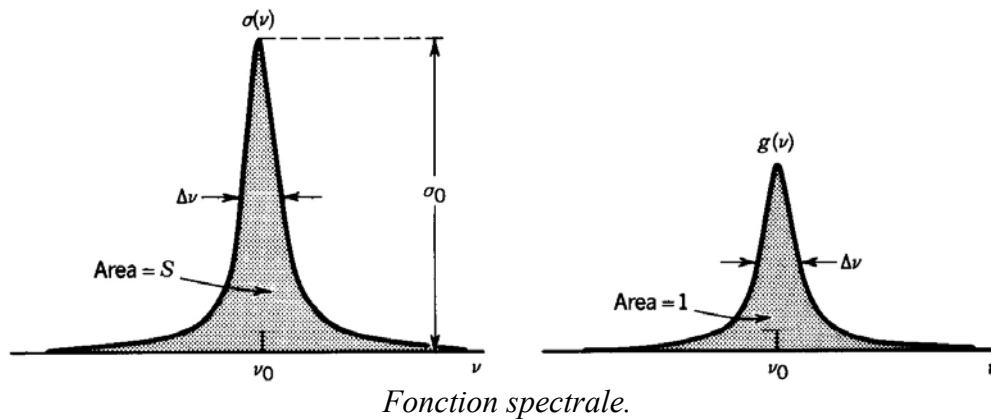
S'il y a un nombre d'atomes  $N$  dans l'état excité alors la densité de probabilité d'émission d'un photon est :

$$P_{spont} = N \frac{c}{V} \sigma(\nu)$$

On a décrit ici l'émission dans un mode électromagnétique donné. Il faut aussi tenir compte de tous les modes présents à la fréquence  $\nu$  qui est donné par  $\rho_{3D}(\nu) \cdot V$

$$P_{spont} = \int_0^{+\infty} \frac{c}{V} \sigma(\nu) V \rho_{3D}(\nu) d\nu$$

En général  $\sigma(\nu)$  n'est pas exactement une fonction  $\delta(\nu-\nu_0)$  (avec  $h\nu_0 = E_1-E_2$ ) mais est une fonction centrée autour de  $\nu_0$ .



On définit  $g(\nu)$ , la *fonction spectrale* comme la fonction  $\sigma(\nu)$  normée à 1 :

$$g(\nu) = \frac{\sigma(\nu)}{\int_0^{+\infty} \sigma(\nu) d\nu} \quad \propto [T]$$

et l'intégrale  $S = \int_0^{+\infty} \sigma(\nu) d\nu$  est la *force de la transition*.

Note :  $S$  a les dimensions d'une surface par unité de temps. Elle est parfois appelée force d'oscillateur, surtout dans les livres anciens. Comme nous le verrons plus tard, il est plutôt d'usage maintenant de réserver le nom de force d'oscillateur à une quantité sans dimension dont la signification est voisine : une mesure de la force du couplage entre la lumière et l'atome.

La fonction  $\rho_{3D}(\nu)$  varie lentement autour de  $\nu_0 \pm \Delta\nu$  et l'on peut la sortir de l'intégrale.

$$P_{spont} = \rho_{3D}(\nu_0) c S = \frac{8\pi\nu_0^2}{c^3} c S$$

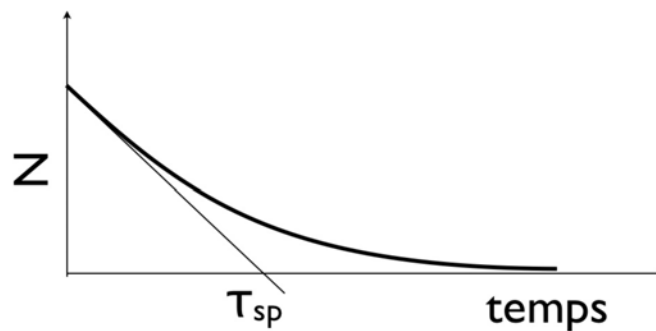
$$P_{spont} = \frac{8\pi}{\lambda_0^2} S \quad \text{Taux d'émission spontanée}$$

L'évolution d'une population de  $N$  atomes excités est décrite par :

$$\begin{aligned} \frac{dN}{dt} &= -NP_{spont} \\ &= -N \frac{8\pi}{\lambda_0^2} S \end{aligned}$$

et

$$N(t) = N_0 e^{-\frac{t}{\tau_{sp}}}$$



*Temps de vie, déclin exponentiel.*

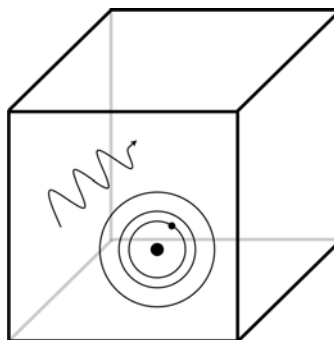
avec

$$\tau_{sp} = \frac{\lambda_0^2}{8\pi S} \quad \text{Durée de vie de l'émission spontanée}$$

$$\frac{1}{\tau_{sp}} \quad \text{Taux d'émission spontanée}$$

### 5.2.2 Absorption.

C'est le processus inverse de l'émission. L'atome est dans un état fondamental avec un photon présent dans l'enceinte.

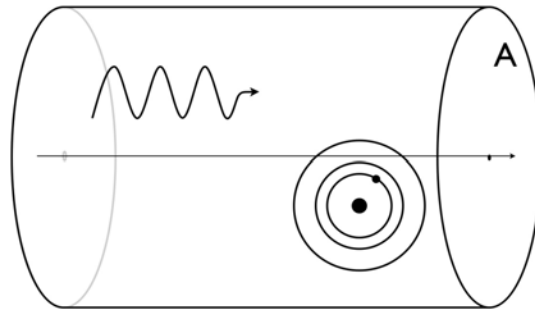


De la même manière, on aura par photon :  $P_{abs} = \frac{c}{V} \sigma(\nu)$

A priori le coefficient de proportionnalité est le même. Cela peut se démontrer quand on calcule explicitement  $\sigma(\nu)$ . En ce qui nous concerne, on peut remarquer que c'est en accord avec les principes de microréversibilité des lois de la physique statistique. Il faut ensuite sommer sur le nombre de photons présents :

$$P_{abs} = \bar{n} \frac{c}{V} \sigma(\nu)$$

Il est plus parlant expérimentalement d'exprimer  $P_{abs}$  en fonction du flux lumineux incident. Considérons le volume  $V$  sous la forme d'un cylindre de base  $A$  et de direction parallèle à la direction de propagation.



Soit  $J$  le flux lumineux (intensité par unité de surface) propagé par le mode. Ce mode propage à la vitesse  $c$  une densité d'énergie  $\rho_{em} = \frac{J}{c}$  (par définition même d'un vecteur densité de courant,  $\vec{J} = \rho\vec{v}$ ). La quantité d'énergie présente dans le volume  $V$  est donc  $\rho V = J \frac{V}{c}$  et le nombre de quanta est :

$$\bar{n} = \frac{J}{h\nu} \frac{V}{c} = \Phi \frac{V}{c}$$

où  $\Phi$  est le nombre de photons détectés par unité de surface et par unité de temps. Il s'ensuit :

$$P_{abs} = \Phi \sigma(\nu) \quad \text{Taux d'absorption}$$

Pour un champ incident qui n'est pas parfaitement monochromatique, soit  $s(\nu)$  la densité d'énergie par volume et par fréquence avec  $s(\nu)$  variant lentement par rapport à  $\sigma(\nu)$ . le nombre moyen de photons entre  $\nu$  et  $\nu+d\nu$  est :

$$\frac{s(\nu)Vd\nu}{h\nu}$$

et

$$\begin{aligned} P_{abs} &= \int_0^{+\infty} \frac{s(\nu)V}{h\nu} \frac{c}{V} \sigma(\nu)d\nu \\ &= \frac{s(\nu_0)}{h\nu_0} c \int_0^{+\infty} \sigma(\nu)d\nu \\ &= \frac{s(\nu_0)}{h\nu_0} cS \end{aligned}$$

en remplaçant  $S$  par son expression en fonction du taux d'émission spontanée. On obtient :



$$P_{abs} = \frac{s(\nu_0)}{h\nu_0} c \frac{\lambda_0^2}{8\pi\tau_{sp}}$$

soit

$$P_{abs} = \frac{\lambda_0^3}{8\pi h} s(\nu_0) \frac{1}{\tau_{sp}}$$

Le terme  $\frac{\lambda_0^3}{8\pi} s(\nu_0)$  peut s'exprimer en fonction de  $\rho_{3D}(\nu)$  :

$$\frac{\lambda_0^3}{8\pi h} s(\nu_0) = \frac{c^3}{8\pi h\nu_0^3} s(\nu_0) = \frac{c^3}{8\pi\nu_0^2} \frac{s(\nu_0)}{h\nu_0} = \frac{s(\nu_0)}{\rho_{3D}(\nu_0)h\nu_0}$$

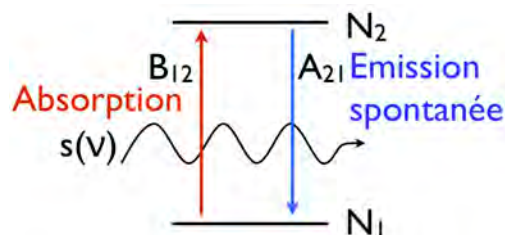
dont l'interprétation physique est le nombre moyen  $\bar{n}$  de photon dans le mode :

$$P_{abs} = \frac{\bar{n}}{\tau_{sp}} \quad \text{Taux d'absorption}$$

L'absorption est  $\bar{n}$  fois plus efficace que l'émission spontanée, ce qui poserait des problèmes s'il n'y avait que ces deux mécanismes, comme nous allons le voir dans ce qui suit.

### 5.2.3 Emission stimulée.

Supposons un ensemble de N atomes soumis à un rayonnement électromagnétique de densité spectrale  $s(\nu)$ . On assimilera les atomes à des systèmes à deux niveaux  $E_1$ , énergie de l'état fondamental et  $E_2$  énergie de l'état excité. Soit  $N_1$  et  $N_2$  les populations sur les deux niveaux.



*Système à deux niveaux en présence d'absorption et d'émission spontanée.*

La probabilité d'émission spontanée est donnée par :

$$P_{spont} = \frac{N_2}{\tau_{sp}}$$

que l'on notera  $N_2 A_{21}$ , avec  $A_{21} = 1/\tau_{sp}$

et l'absorption :

$$P_{abs} = N_1 \frac{c^3}{8\pi h \nu_0^3} s(\nu_0) \frac{1}{\tau_{sp}}$$

que l'on écrira :

$$P_{abs} = N_1 B_{12} s(\nu_0)$$

avec

$$B_{12} = \frac{c^3}{8\pi h \nu_0^3} \frac{1}{\tau_{sp}} = \frac{c^3}{8\pi h \nu_0^3} A_{21}$$

On peut alors écrire les équations de bilan, à l'équilibre :

$$\begin{aligned} \frac{dN_2}{dt} = -\frac{dN_1}{dt} &= -N_2 A_{21} + N_1 B_{12} s(\nu_0) = 0 \\ \Rightarrow s(\nu_0) &= \frac{N_2}{N_1} \frac{A_{21}}{B_{12}} \end{aligned}$$

Si les atomes sont dans la cavité qui a été utilisée pour décrire le rayonnement du corps noir et si l'équilibre thermodynamique est atteint, on sait alors que :

- il existe une distribution de Boltzmann entre les deux niveaux  $\frac{N_2}{N_1} = e^{\frac{-(E_2-E_1)}{k_B T}} = e^{\frac{-h\nu_0}{k_B T}}$
- $s(\nu)$  est la densité d'énergie calculée dans le chapitre précédent  $s(\nu_0) = \frac{8\pi h \nu_0^3}{c^3 (e^{\frac{h\nu_0}{k_B T}} - 1)}$

ce qui conduit à :

$$s(\nu_0) = \frac{8\pi h \nu_0^3}{c^3} \frac{1}{e^{\frac{h\nu_0}{k_B T}} - 1} = \frac{A_{21}}{B_{12}} \frac{1}{e^{\frac{h\nu_0}{k_B T}} - 1}$$

Relation qu'il n'est pas possible de satisfaire pour toute température (l'expérience montre que les coefficients A et B sont indépendants de T). Constatant cela, en 1916 Einstein postule l'existence d'un troisième mécanisme de recombinaison, décrit par le coefficient  $B_{21}$ , afin de satisfaire l'équilibre thermodynamique entre le rayonnement du corps noir et les atomes présents :

$$s(\nu_0) = \frac{8\pi h \nu_0^3}{c^3} \frac{1}{e^{\frac{h\nu_0}{k_B T}} - 1} = \frac{A_{21}}{B_{12} e^{\frac{h\nu_0}{k_B T}} - B_{21}}$$

La signification physique du terme  $B_{21}$  est un mécanisme de recombinaison proportionnel au nombre de photons par mode, d'où le nom *émission stimulée* :

$$P_{st} = N_2 B_{21} s(\nu_0) \quad \text{Taux d'émission stimulée}$$

Les équations de bilan deviennent alors :

$$\frac{dN_2}{dt} = -\frac{dN_1}{dt} = -N_2 A_{21} - N_2 B_{21} s(\nu_0) + N_1 B_{12} s(\nu_0) = 0$$

ce qui implique :

$$s(\nu_0) = \frac{8\pi h \nu_0^3}{c^3} \frac{1}{e^{\frac{h\nu_0}{k_B T}} - 1} = \frac{\frac{A_{21}}{B_{21}}}{\frac{B_{12}}{B_{21}} \frac{N_1}{N_2} - 1}$$

qui peut maintenant être satisfait quelque soit la température, avec :

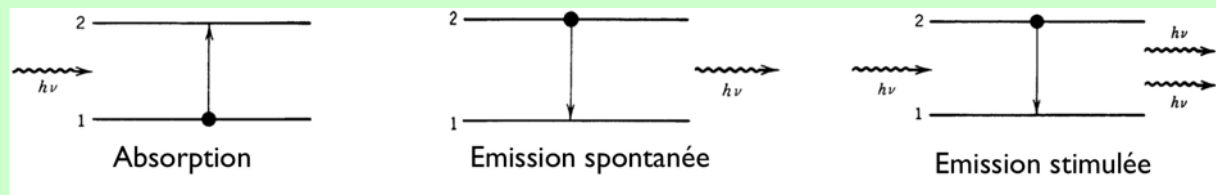
$$\begin{aligned} B_{12} &= B_{21} = B \\ A &= A_{21} = \frac{8\pi h \nu_0^3}{c^3} B_{21} \end{aligned} \quad \text{Relations d'Einstein}$$

Note : on avait déjà établi la relation entre A et B auparavant.

Un calcul exactement identique à celui qui a été fait pour l'absorption donne :

$$P_{st} = \frac{\bar{n}}{\tau_{sp}} \quad \text{Taux d'émission stimulée}$$

## 5.2.4 Résumé :



### Emission spontanée

1 atome, 1 mode

$$P_{spont} = \frac{c}{V} \sigma(\nu)$$

$N_2$  atomes, tous les modes présents

$$\frac{dN_2}{dt} = -\frac{N_2}{\tau_{sp}} = -AN_2$$

Temps d'émission spontanée

$$\tau_{sp} = \frac{\lambda_0^2}{8\pi S} \text{ et } S = \int_0^{+\infty} \sigma(\nu) d\nu$$

### Absorption

1 atome, 1 mode, 1 photon

$$P_{abs} = \frac{c}{V} \sigma(\nu)$$

$N_1$  atomes,  $\phi_i$  incident  $[n_{photons}][L]^{-2}[T]^{-1}$

$$\frac{dN_1}{dt} = -N_1 \frac{\bar{n}}{\tau_{sp}}$$

$$s(\nu) \quad [W_{travail}][L]^{-3}[T]$$

$$\frac{dN_1}{dt} = -N_1 \frac{\lambda_0^3}{8\pi h \tau_{sp}} s(\nu_0) = -N_1 B_{12} s(\nu_0)$$

$$W_i = \phi_i \sigma(\nu) \quad [n_{photons}][T]^{-1}$$

$$\frac{dN_1}{dt} = -N_1 \phi_i \sigma(\nu) = -N_1 W_i$$

### Emission stimulée

1 atome, 1 mode, 1 photon

$$P_{st} = \frac{c}{V} \sigma(\nu)$$

$N_2$  atomes,  $\phi_i$  incident,  $s(\nu)$ ,  $W_i$

$$\frac{dN_2}{dt} = -N_2 \frac{\bar{n}}{\tau_{sp}}$$

$$\frac{dN_2}{dt} = -N_2 B_{21} s(\nu_0)$$

$$\frac{dN_2}{dt} = -N_2 \phi_i \sigma(\nu) = -N_2 W_i$$

### Relations d'Einstein

la somme des mécanismes de recombinaison est :

$$B = B_{12} = B_{21} \text{ et } \frac{A}{B} = \frac{8\pi h \nu_0^3}{c^3}$$

$$\frac{dN_2}{dt} = -\frac{(1 + \bar{n})}{\tau_{sp}} N_2$$

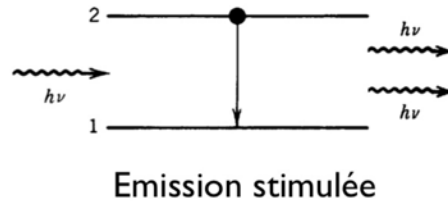
$$\frac{dN_2}{dt} = -AN_2 - N_2 B s(\nu_0) = -AN_2 - N_2 W_i$$

et l'absorption :

$$\frac{dN_1}{dt} = -\frac{\bar{n}}{\tau_{sp}} N_1 = -N_1 B s(\nu_0) = -N_1 W_i$$

### 5.3 Quelques remarques sur l'interaction matière-rayonnement.

#### 5.3.1 Emission stimulée.



Le discours usuel sur l'émission stimulée consiste à dire que le photon stimulé a :

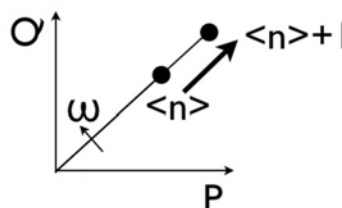
- La même énergie que le photon incident                   ✓       même fréquence
- La même polarisation que le photon incident           ✓       deux états propres différents, qui a priori restent orthogonaux
- La même phase                                                    ?       ?????????

*Classiquement*, c'est assez concevable. Le système fonctionne comme un amplificateur de gain  $g = |g|e^{i\alpha_s}$ . C'est la même onde qui a été amplifiée. Le problème de la phase relative entre les deux ondes ne se pose même pas dans le sens où il n'y a qu'une seule onde à la sortie. Si vraiment on veut persister à faire interférer une onde excitatrice  $U$  et une onde stimulée d'amplitude,  $\gamma e^{i\varphi}U$  on remarquera que le résultat prend la forme d'une seule onde harmonique :

$$\begin{aligned}
 U &= U_{exc} + U_{st} \\
 &= Ue^{i\omega t} + \gamma Ue^{i\omega t} \\
 &= gUe^{i\omega t}
 \end{aligned}$$

avec le gain  $\gamma \in \mathbb{C}$  et le gain en puissance  $G = |g|^2$ . Dans cette expression familière l'affirmation que les ondes sont "en phase" veut simplement dire que les deux ondes sont mutuellement cohérentes.

*Quantiquement*, il n'y a pas d'opérateur de phase pour le photon donc la question n'a pas de sens. On peut néanmoins remarquer que si on considère un état cohérent classique, c'est-à-dire un état dont  $\alpha$  est assez grand pour que l'on puisse parler de phase  $\varphi$  au moins à  $\Delta \varphi$  près,



*Emission stimulée.*

l'état final passe de  $\bar{n}$  à  $\bar{n} + 1$ , il n'y a rien qui incite à supposer que la lumière devienne un état compressé dans ce processus donc le disque d'incertitude sur les deux quadratures reste un disque. Il n'y a rien non plus qui tend à briser la symétrie et l'état final le plus "naturel" est un état  $\bar{n} + 1$  "de même phase".

### 5.3.2 Optique en cavité.

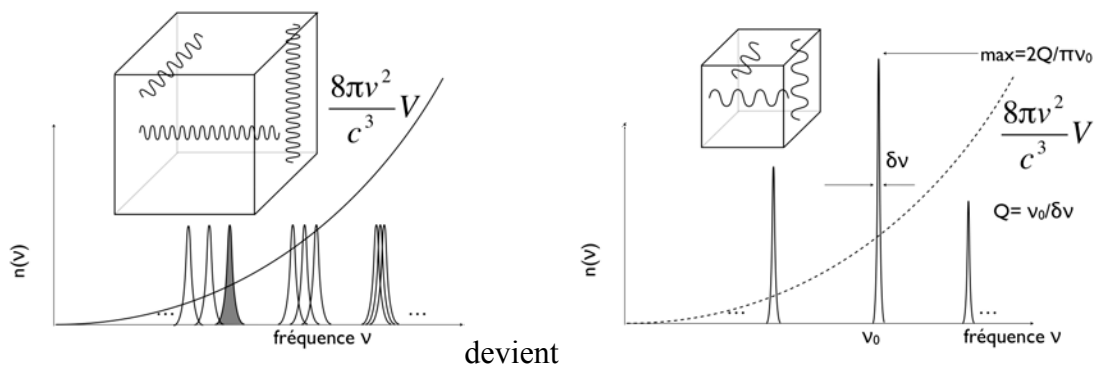
Contrairement à ce que l'on pourrait croire les relations entre  $A$ ,  $B$ ,  $\sigma(\nu)$ ,  $S$  et  $\tau_{sp}$  ne sont pas universelles. Le calcul précédent a été fait dans l'espace libre dont on a calculé la densité de mode électromagnétique,  $\rho_{3D}(\nu) = \frac{8\pi\nu^2}{c^3}$  nombre de modes par unité de volume et par unité de fréquence. Les relations trouvées font expressément référence à cette fonction :

$$\frac{A}{B} = \frac{8\pi h\nu^3}{c^3} = h\nu\rho_{3D}(\nu)$$

$$\frac{1}{\tau_{sp}} = \frac{8\pi S}{\lambda^2} = \frac{8\pi\nu^2}{c^3} cS = c\rho_{3D}S$$

Si par un procédé expérimental on peut modifier la densité d'états de modes électromagnétique, on est alors capable de modifier les taux d'émission spontanée et stimulée et l'absorption, soit de l'inhiber soit de l'augmenter. C'est tout le domaine très actuel de l'optique quantique en cavité.

Dans une cavité optique de dimension comparable à la longueur d'onde, les modes électromagnétiques ne forment plus un continuum mais des pics bien distincts :



Densité de modes électromagnétique dans l'espace libre et en cavité.

Dans un système réel, ces modes ne sont pas des fonctions  $\delta$  mais sont élargis par une durée de vie finie et la fonction  $\delta(\nu - \nu_0)$  est remplacée par une Lorentzienne  $\mathcal{L}(\nu - \nu_0)$  (pour plus de détails voir le chapitre sur la cohérence) d'intégrale unité et de largeur à mi-hauteur  $\delta\nu$  :

$$\mathcal{L}(\nu) = \frac{1}{2\pi} \frac{\delta\nu}{\left(\frac{\delta\nu}{2}\right)^2 + (\nu - \nu_0)^2}$$

Pour lequel on définit le coefficient de qualité, inverse de la largeur normalisée :  $Q = \frac{\nu_0}{\delta\nu}$

$$\mathcal{L}_{\max}(\nu) = \frac{2Q}{\pi\nu_0}$$

Si  $Q$  est grand et le volume petit,  $\mathcal{L}_{\max}$  peut être plus grande que la densité d'état de modes dans un espace libre de même volume. En reprenant le calcul de l'émission spontanée et en supposant qu'un mode électromagnétique est résonnant avec la transition atomique ( $h\nu_0 = E_2 - E_1 = h\nu_{at}$ )

$$P_{spont} = \int_0^{+\infty} \frac{c}{V} \sigma(\nu) V \rho_{3D}(\nu) d\nu$$

il y a deux différences :

- Le terme  $\rho_{3D}(\nu)V = \frac{8\pi\nu^2}{c^3}V$  devient  $\frac{2Q}{\pi\nu_0}$
- Le terme  $\sigma(\nu)$  devient  $3\sigma(\nu)$  pour des raisons géométriques d'absence de moyennage dans toutes les directions de l'espace.

Le rapport entre le taux d'émission spontanée dans la cavité et dans le vide est :

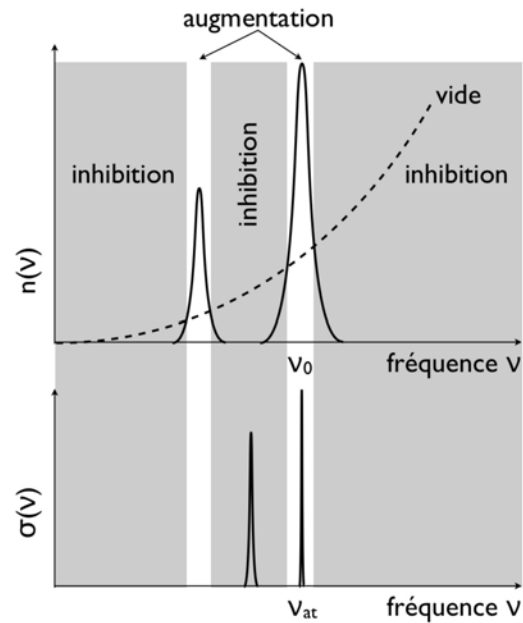
$$\frac{1}{\frac{\tau_{cav}}{1}} = \frac{\tau_{sp}}{\tau_{cav}} = 3 \frac{\frac{2Q}{\pi\nu_0}}{\frac{8\pi\nu_0^2}{c^3}V} = \frac{3}{4\pi^2} \frac{c^3}{V} Q$$

$$F_P = \frac{\tau_{sp}}{\tau_{cav}} = \frac{3}{4\pi^2} \frac{\lambda^3}{V} Q \quad \text{Facteur de Purcell}$$

qui est d'autant plus grand que le facteur de qualité est grand *et* le volume en unité de la longueur d'onde de la transition est petit (d'où l'intérêt pour les *microcavités* optiques).

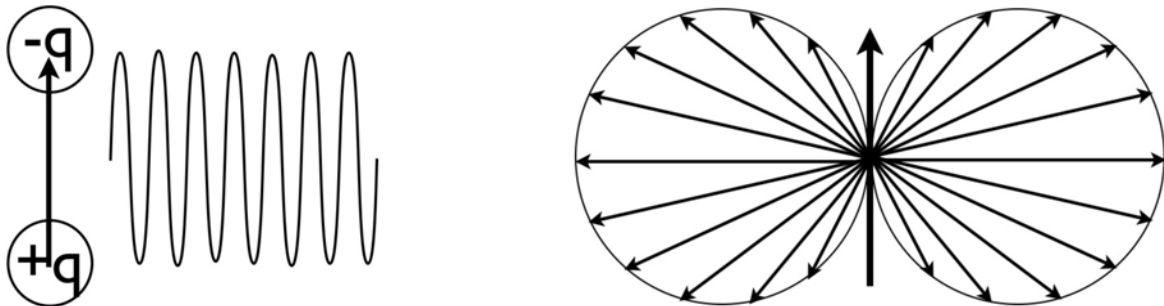
Lorsque l'énergie de la transition atomique et le mode optique sont résonnants, le taux d'émission spontanée est *augmenté* d'un facteur  $\frac{3}{4\pi^2} \frac{\lambda^3}{V} Q$ .

De la même manière, hors résonance,  $\rho(\nu = \nu_{at}) \rightarrow 0$  et l'émission spontanée est *inhibée*.



Optique en cavité.

Note sur le facteur 3 : Une description plus précise de l'émission fait assimiler la source rayonnante au rayonnement d'un dipôle  $\vec{p}$  oscillant (pour plus de détails voir par exemple le cours d'électromagnétisme, théorie des antennes),  $\vec{p} = q\vec{d} = q\vec{d}_0 e^{i\omega t}$ .



Emission d'un dipôle.

Cet objet a une orientation, celle du dipôle  $\vec{p}$  et l'efficacité de la transition va être influencée par l'orientation,  $\theta$ , relative de  $\vec{p}$  et du champ du mode électromagnétique car un dipôle oscillant ne rayonne pas de manière isotrope.  $\sigma(\theta) = \sigma_{\max} \cos^2 \theta$  qui vaut 0 si les deux vecteurs sont parallèles et est maximum si ils sont perpendiculaires. Dans le calcul général le terme  $\sigma(\nu)$  utilisé est en fait une moyenne  $\langle \sigma(\nu) \rangle_{\theta}$  sur toutes les orientations possibles entre les deux vecteurs, alors que dans le calcul en cavité on suppose que l'atome émetteur unique est orienté idéalement avec le mode de la cavité et  $\sigma(\nu) = \sigma_{\max}$ .

$\langle \sigma(\nu) \rangle_{\theta}$  est une moyenne dans l'espace :

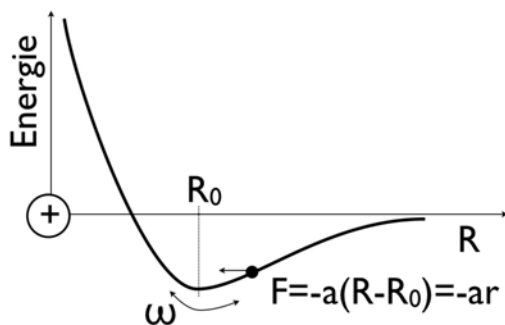
$$\begin{aligned} \langle \sigma(\nu) \rangle_{\theta} &= \sigma_{\max} \langle \cos^2 \theta \rangle_{3D,\theta} = \sigma_{\max} \frac{1}{4\pi} \int_{\Omega} \cos^2 \theta d\Omega \\ &= \sigma_{\max} \frac{1}{4\pi} \int_0^{\pi} 2\pi \cos^2 \theta \sin \theta d\theta = \frac{1}{2} \left[ -\frac{1}{3} \cos^3 \theta \right]_0^{\pi} \sigma_{\max} = \frac{1}{3} \sigma_{\max} \end{aligned}$$



### 5.3.3 Théorie classique de l'absorption, force d'oscillateur.

On représente l'électron lié au noyau atomique comme une particule dans un puits de potentiel centré sur la position d'équilibre  $R_0$ . Lorsque l'électron est éloigné de sa position d'équilibre il est soumis à une force de rappel :  $\vec{F} = -a(\vec{R} - \vec{R}_0) = -a\vec{r}$ .

On suppose que le retour à l'équilibre se fait par une force de frottement élastique, tout à fait usuelle en mécanique :  $\vec{f} = -b\vec{v}$ .



*Electron lié dans le modèle de Lorentz.*

En l'absence de force extérieure la loi de la dynamique s'écrit (en se restreignant à une dimension sur  $x$ ) :

$$m \frac{d^2 x}{dt^2} = -ax - b \frac{dx}{dt}$$

En présence d'une onde électromagnétique il faut aussi ajouter la force de Lorentz  $\vec{F} = q(\vec{E} + \vec{v} \wedge \vec{B})$ . On néglige la partie magnétique qui ne devient comparable à la partie électrique que pour des vitesses relativistes proches de  $c$ .

$$\vec{E} = E_0 e^{-i(\omega t - kx)} \vec{u}_x$$

l'équation de la dynamique devient :

$$m \frac{d^2 x}{dt^2} = -ax - b \frac{dx}{dt} - eE_0 e^{-i(\omega t - kx)}$$

que l'on préfère mettre sous la forme :

$$\frac{d^2 x}{dt^2} + \beta \frac{dx}{dt} + \omega_0^2 x = -\frac{e}{m} E_0 e^{-i(\omega t - kx)}$$

avec :

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{a}{m}} \quad \text{et} \quad \beta = \frac{b}{m}$$

dont on cherche les solutions harmoniques en  $x = Xe^{-i\omega t}$  :

$$-\omega^2 x - i\omega\beta x + \omega_0^2 x = -\frac{e}{m} E_0 e^{-i(\omega t - kx)}$$

soit :

$$x = \frac{e}{m} \frac{1}{(\omega^2 - \omega_0^2 + i\omega\beta)} E_0 e^{-i(\omega t - kx)}$$

le dipôle créé par ce déplacement est  $\vec{p} = -ex\vec{u}_x = -\alpha\vec{u}_x$ , la polarisabilité  $\alpha$  de l'atome est donc :

$$\alpha(\omega) = \frac{e^2}{m(\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\beta)}$$

si il y a N atomes par unité de volume la densité de polarisation est  $\vec{P} = N\vec{p}$  et la susceptibilité du milieu est par définition,  $\vec{P} = \epsilon_0\chi(\omega)\vec{E}$  :

$$\chi(\omega) = \frac{Ne^2}{m\epsilon_0(\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\beta)}$$

Note : si il y a plusieurs types d'atomes en présence :

$$\chi(\omega) = \sum_j \frac{N_j e^2}{m\epsilon_0} \frac{1}{(\omega_j^2 - \omega^2 - i\omega\beta_j)}$$

et la susceptibilité électrique  $\chi$  et la permittivité relative  $\epsilon_r$  :

$$\begin{aligned} \vec{D} &= \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \\ &= \epsilon_0 (1 + \chi) \vec{E} = \epsilon_0 \epsilon_r \vec{E} \end{aligned}$$

$$\epsilon_r(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{m\epsilon_0} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\beta} \quad \text{Permittivité relative de l'oscillateur de Lorentz}$$

ce qui permet d'en déduire l'indice de réfraction complexe  $\tilde{n}$  :

$$\tilde{n}^2(\omega) = \left( \frac{k_{mat}}{k_0} \right)^2 = \frac{\epsilon_0 \epsilon_r \mu_0 \mu_r}{\epsilon_0 \mu_0} = \epsilon_r(\omega)$$

$$\tilde{n}^2(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{m\epsilon_0} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\beta} \quad \text{Indice de réfraction de l'oscillateur de Lorentz}$$

$\tilde{n}$  est une quantité complexe  $\tilde{n}(\omega) = n(\omega) + i\kappa(\omega)$ . La partie imaginaire s'interprète comme une absorption. Formellement la solution s'écrit :

$$\begin{aligned} E &= E_0 e^{i(kx - \omega t)} \\ &= E_0 e^{i(\tilde{n}k_0 x - \omega t)} \end{aligned}$$

avec

$$k = \frac{\omega}{\tilde{v}} = \frac{\omega}{c} \tilde{n} = k_0 \tilde{n}$$

$$\begin{aligned} E &= E_0 e^{i(\tilde{n}k_0 x - \omega t)} \\ &= E_0 e^{i(nk_0 x + i\kappa k_0 x - \omega t)} \\ &= E_0 e^{-\kappa k_0 x} e^{i(nk_0 x - \omega t)} \end{aligned}$$

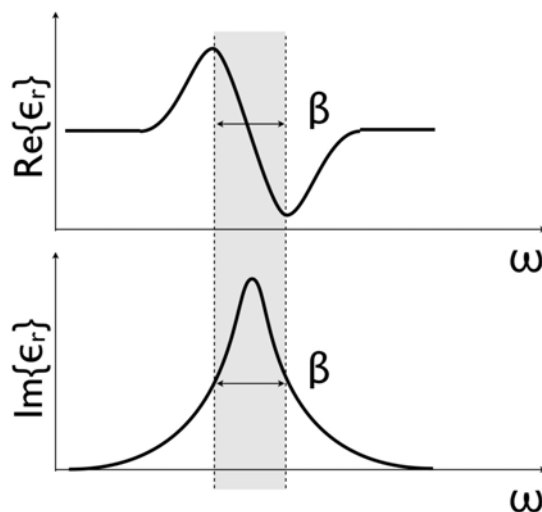
qui est une onde dont l'intensité décroît de manière exponentielle, comme une loi d'absorption dite de Lambert-Beer (incorrectement, car la loi avait été découverte un siècle avant par P. Bouguer) :

$$\begin{aligned} I(x) &\propto \langle |E|^2 \rangle_t = e^{-2\kappa k_0 x} \langle |E_{x=0}|^2 \rangle_t \\ &\propto e^{-2\kappa k_0 x} I_0 \end{aligned}$$

le coefficient d'absorption  $\alpha$  valant :

$$\alpha = 2\kappa k_0 = \frac{4\pi\kappa}{\lambda_0} = \frac{4\pi \operatorname{Im}\{\tilde{n}\}}{\lambda_0}$$

la forme des fonctions  $n(\omega)$  et  $\kappa(\omega)$  ou  $\operatorname{Re}\{\epsilon_r(\omega)\}$  et  $\operatorname{Im}\{\epsilon_r(\omega)\}$  sont très proche de fonctions Lorentzienne pour les partie imaginaires et en N pour les parties réelles.



Partie réelle et imaginaire de la permittivité relative.

La zone de fréquence où l'indice décroît avec  $\omega$  est souvent dénommée dispersion anormale.

Note : On voit dans cet exemple que la partie réelle et la partie imaginaire de  $n$  ou de  $\varepsilon$  sont couplées, elles ne varient pas de manière indépendante. C'est une propriété très générale qui est une conséquence du principe de causalité (l'effet se produit *après* la cause). Il faut savoir que ces deux quantités parties réelles et parties imaginaires d'une fonction de transfert sont reliées par des relations intégrales dites transformée de Hilbert en mathématique, relations de Kramers-Kronig en physique et de Bayer-Bode en théorie des systèmes linéaires. Sous une forme simplifiée, elles s'écrivent :

$$\begin{aligned}
 f(\omega) &= f_1(\omega) + if_2(\omega) \\
 f_1(\omega) &= \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{\omega' f_2(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \quad \text{ou plus généralement} \\
 f_2(\omega) &= -\frac{2\omega}{\pi} \int_0^{\infty} \frac{f_1(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \\
 f_1(\omega) &= \frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f_2(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega' \\
 f_2(\omega) &= -\frac{1}{\pi} \mathcal{P} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{f_1(\omega')}{\omega' - \omega} d\omega'
 \end{aligned}$$

où  $\mathcal{P}$  désigne la partie principale de l'intégrale (hors programme lors de l'examen).

Le modèle précédent prédit un poids  $\frac{e^2}{m\varepsilon_0}$  pour chaque résonance atomique. Au XIX<sup>ème</sup> siècle

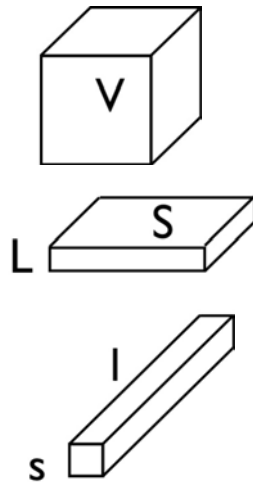
les mesures quantitatives des spectres d'absorption donnent toujours des valeurs inférieures, ce qui a conduit à introduire un paramètre phénoménologique  $f$ , nombre sans dimension, pour pondérer le terme en  $\frac{e^2}{m\varepsilon_0}$ , la force d'oscillateur :

$$\tilde{n}^2(\omega) = 1 + \frac{fNe^2}{m\varepsilon_0} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\beta} \quad \text{Force d'oscillateur}$$

Par exemple pour les raies de l'atome d'hydrogène :

Raie (Å)	f
1216	0.416
1026	0.079
973	0.029
950	0.014
938	0.0078
931	0.0048

Note : Pour un milieu homogène la quantité  $Nf$  de dimension par unité de volume est parfois aussi appelée force d'oscillateur. Pour un milieu bidimensionnel d'épaisseur caractéristique  $L$  ou bien linéique de section caractéristique  $s$ , la force d'oscillateur est donnée par unité de surface ou de longueur.



$$\tilde{n}^2(\omega) = 1 + \frac{\left(f \frac{n}{V}\right) e^2}{\epsilon_0 m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\beta}$$

$$\tilde{n}^2(\omega) = 1 + \frac{\left(f \frac{n}{S}\right) e^2}{\epsilon_0 mL} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\beta}$$

$$\tilde{n}^2(\omega) = 1 + \frac{\left(f \frac{n}{l}\right) e^2}{\epsilon_0 ms} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\beta}$$

### 5.3.4 Théorie semi-classique de l'absorption, force d'oscillateur.

Comme dans le cours sur les photons, on ne rentre pas dans les détails. Le but est simplement de donner un aperçu de la théorie semi-classique de l'interaction matière-rayonnement et d'introduire les notions fondamentales. Les deux ingrédients de base sont :

#### Hamiltonien en présence d'un champ électromagnétique :

On montre que le Hamiltonien d'une particule de masse  $m$  et de charge  $q$   $H_0 = \frac{p^2}{2m} + V(r)$  garde une forme semblable mais après avoir remplacé l'opérateur  $p$  par  $p - qA$  :

$$H = \frac{(p - qA(r,t))^2}{2m} + V(r) + qU(r,t)$$

où  $A(r,t)$  et  $U(r,t)$  sont les potentiels vecteurs et électrique (scalaire) décrivant le champ électromagnétique.

Moyennant quelques approximations (champ peu intense, etc...) et une jauge bien choisie, notamment telle que  $U(r,t)=0$  (pour une discussion qui dépasse le cadre de ce cours voir par exemple Cohen-Tannoudji, TII, A<sub>XIII</sub>), on peut mettre le Hamiltonien sous les formes :

$$H = H_0 + W$$

avec :

$$W = -\frac{q}{m} A(r,t) \cdot p$$

Hamiltonien A.p

jauge de Coulomb

$$W = -q r \cdot E(r,t) = -D \cdot E(r,t)$$

Hamiltonien dipolaire électrique

jauge de Göppert-Mayer

On peut montrer que les deux formes sont équivalentes.

Pour une onde plane :

$$A = \frac{E_0}{\omega} \sin(kr - \omega t) \text{ et } E = E_0 \cos(kr - \omega t)$$

### **Théorie des perturbations dépendantes du temps :**

On applique la théorie de perturbations dépendantes du temps (voir cours mécanique quantique II). Pour deux états propres  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$ , d'énergie  $E_1$  et  $E_2$ , du Hamiltonien non perturbé, la probabilité par unité de temps de transition de  $|1\rangle$  vers  $|2\rangle$  lorsque le système est soumis à une perturbation harmonique (en  $\sin\omega t$ ) est donnée par la *règle d'or de Fermi* :

$$W_{12} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle 2|W|1\rangle|^2 \delta(E_2 - E_1 - \hbar\omega)$$

ou, plus précisément en tenant compte de la densité d'état (dégénérescence) de l'état final :

$$W_{12} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle 2|W|1\rangle|^2 \rho_2(E_2 = E_1 + \hbar\omega)$$

Note :  $\rho_2$  est important, pour l'émission ce sera la densité d'état des modes électromagnétiques car l'atome peut émettre indifféremment dans tous les modes à la fréquence  $\omega$ ,  $\rho(\nu) = \frac{8\pi\nu^2}{c^3}$ .

En utilisant soit le Hamiltonien A.p ou E.r on peut alors calculer la probabilité de transition (absorption ou émission stimulée) ou bien la susceptibilité optique  $\chi$  et en déduire la permittivité  $\epsilon$  (voir par exemple le cours de mécanique quantique de Cohen-Tannoudji). On obtient une absorption Lorentzienne identique à la formule classique, mais cette fois la force d'oscillateur est prédite et est donnée par l'élément de matrice de l'interaction entre  $|1\rangle$  et  $|2\rangle$  :

$$f_{21} = \frac{2m}{\hbar} \omega_{21} |\langle 2|r\vec{\epsilon}|1\rangle|^2 \quad \text{Force d'oscillateur}$$

où  $\vec{\epsilon}$  est le vecteur polarisation,  $\vec{\epsilon} = \frac{\vec{E}}{|E|}$

ou bien :

$$f_{21} = \frac{2}{m\hbar\omega_{21}} |\langle 2|p\vec{\epsilon}|1\rangle|^2$$

Dans un système où le niveau  $|1\rangle$  peut effectuer des transitions entre plusieurs niveaux différents on peut montrer :

$$\sum_i f_{i1} = 1 \quad \text{Règle de somme de Thomas Reiche Kuhn}$$

S'il y a  $N$  atomes :

$$\sum_i f_{i1} = N$$

dont la signification physique est que la valeur classique  $\frac{Ne^2}{m\epsilon_0}$  est répartie entre les différentes transitions mais la somme est égale à la valeur classique.

