

## Physique atomique et moléculaire

M. Claude COHEN-TANNOUJJI, professeur

Le cours de l'année antérieure avait porté sur l'étude des fonctions de corrélation d'un système quantique à partir des équations de Langevin-Mori. Ces équations, établies de manière générale grâce à la technique des opérateurs de projection introduite par Zwanzig, décrivent comment les observables intéressantes du système évoluent sous l'effet d'une force de friction retardée, qui est responsable de l'amortissement du système, et d'une force de Langevin fluctuante, qui introduit des fluctuations dans le comportement de ce système. Une telle approche avait été ensuite appliquée à l'étude des fonctions de corrélation et fonctions de mémoire d'un système en équilibre thermodynamique.

En optique quantique, les systèmes étudiés sont, le plus souvent, hors d'équilibre. Par exemple, dans un oscillateur atomique, comme un maser ou un laser, un mécanisme de pompage approprié permet de réaliser des inversions de population entre deux niveaux d'énergie, ce qui peut entraîner, dans certaines conditions, des auto-oscillations entretenues, c'est-à-dire la transformation, en régime permanent, de l'énergie de pompage incohérente en un rayonnement cohérent ayant des propriétés tout à fait remarquables. Il a donc semblé intéressant de prolonger le cours de l'année antérieure en étudiant, au moyen des équations de Langevin-Mori, les fonctions de corrélation d'un système hors d'équilibre de manière, par exemple, à pouvoir comprendre le fonctionnement d'un laser et les propriétés statistiques du rayonnement qu'il émet.

1) On commence par montrer que, dans le cas très général d'un « petit » système S, hors d'équilibre et couplé à un « grand » réservoir R, on peut associer à toute réduction de l'équation de Schrödinger en équation pilote pour S, une réduction des équations de Heisenberg en équations de Langevin-Mori, les opérateurs de projection utilisés dans les deux réductions étant adjoints l'un de l'autre. Il est possible alors d'utiliser les résultats obtenus antérieurement lors de l'étude de l'équation pilote de S pour trouver le projecteur P qu'il faut appliquer aux équations de Heisenberg pour les trans-

former en équations de Langevin-Mori. L'action de  $\mathbf{P}$  sur une observable quelconque revient à prendre la « moyenne sur le réservoir » de cette observable. On établit ainsi, de manière très générale, la structure des équations de Langevin-Mori des observables de  $\mathbf{S}$ . On montre que la moyenne sur le réservoir des forces de Langevin est nulle et que l'évolution des moyennes à un temps déduite de ces équations coïncide avec celle donnée par l'équation pilote.

On aborde ensuite, dans le cadre d'un traitement perturbatif des interactions entre  $\mathbf{S}$  et  $\mathbf{R}$ , l'étude des fonctions de corrélation  $\langle F_\alpha(t) F_\beta(t') \rangle_{\mathbf{R}}$  des forces de Langevin  $F_\alpha$  et  $F_\beta$  agissant sur deux observables  $A_\alpha$  et  $A_\beta$  de  $\mathbf{S}$ . On montre qu'il existe deux échelles de temps bien distinctes dans le problème, le temps de corrélation  $\tau_c$  qui caractérise les fluctuations des observables de  $\mathbf{R}$  couplées à  $\mathbf{S}$  et qui est très court, le temps de relaxation  $T_{\mathbf{R}}$  qui décrit l'amortissement des observables de  $\mathbf{S}$  et son retour à l'équilibre, et qui est beaucoup plus long. L'expression de  $\langle F_\alpha(t) F_\beta(t') \rangle_{\mathbf{R}}$  révèle que les fonctions de corrélation des forces de Langevin dépendent à la fois de  $t-t'$  et de  $t$ . Elles s'écrivent :

$$\langle F_\alpha(t) F_\beta(t') \rangle_{\mathbf{R}} = 2 D_{\alpha\beta}(t) f_{\alpha\beta}(t-t')$$

où  $f_{\alpha\beta}(t-t')$  a pour temps caractéristique  $\tau_c$  et où  $D_{\alpha\beta}(t)$  est un coefficient de diffusion (en fait, un opérateur de  $\mathbf{S}$ ) ayant pour temps caractéristique  $T_{\mathbf{R}}$ . On retrouve donc bien que les forces de Langevin fluctuent très rapidement (temps  $\tau_c$ ). Mais elles ne sont plus stationnaires pour un système hors d'équilibre puisque les coefficients de diffusion  $D_{\alpha\beta}$  dépendent de l'écart à l'équilibre et varient donc lors du retour du système à l'équilibre (temps  $T_{\mathbf{R}}$ ).

2) Le résultat précédent concernant la structure de  $\langle F_\alpha(t) F_\beta(t') \rangle_{\mathbf{R}}$  est en fait valable dans des situations plus générales que celles relevant d'un traitement perturbatif des interactions entre  $\mathbf{S}$  et  $\mathbf{R}$ , pourvu toutefois qu'il existe deux échelles de temps bien distinctes  $\tau_c$  et  $T_{\mathbf{R}}$ . On peut, par exemple, considérer l'effet de collisions fortes subies par les atomes actifs d'un milieu laser contre des perturbateurs, le temps  $\tau_c$  d'une collision étant beaucoup plus court que le temps  $T_{\mathbf{R}}$  entre deux collisions subies par le même atome.

Il paraît donc important d'établir l'expression des fonctions de corrélation  $\langle F_\alpha(t) F_\beta(t') \rangle_{\mathbf{R}}$  directement à partir des équations de Langevin-Mori, sans passer par des développements perturbatifs.

On commence par montrer que, si  $\Delta A_\alpha(t)$  et  $\Delta A_\beta(t)$  désignent les accroissements de  $A_\alpha$  et  $A_\beta$  au cours d'un intervalle de temps  $\Delta t$  long devant  $\tau_c$  mais court devant  $T_{\mathbf{R}}$ , on a  $\langle \Delta A_\alpha(t) \Delta A_\beta(t) \rangle_{\mathbf{R}} = 2 D_{\alpha\beta}(t) \Delta t$  ce qui permet bien d'interpréter physiquement  $D_{\alpha\beta}(t)$  comme un coefficient de diffusion. En calculant de deux manières différentes  $\langle \Delta A_\alpha(t) \Delta A_\beta(t) \rangle_{\mathbf{R}}$ , on obtient des

équations reliant  $D_{\alpha\beta}(t)$  aux taux de relaxation des observables de S et aux valeurs moyennes de ces observables, équations appelées « relations d'Einstein généralisées » et qui traduisent pour un système hors d'équilibre le lien étroit existant entre fluctuations et dissipation. On montre également que les fonctions de corrélation  $\langle A_\alpha(t) A_\beta(t') \rangle_R$  des observables de S, convenablement « lissées » sur un intervalle  $\Delta t$  long devant  $\tau_c$  et court devant  $T_R$ , obéissent, pour  $t \geq t'$ , aux mêmes équations d'évolution (vis-à-vis de  $t$ ) que les moyennes à un temps  $\langle A_\alpha(t) \rangle$ . Il s'agit là du « théorème de régression quantique » qui permet de calculer simplement la dynamique des fluctuations de S.

Tous ces résultats généraux sont illustrés sur de nombreux exemples concrets. Les coefficients de diffusion  $D_{\alpha\beta}$  sont calculés explicitement pour un système à deux niveaux « fermé » (spin 1/2 obéissant à des équations de Bloch ou émission spontanée sur la raie de résonance optique) pour un système à deux niveaux « ouvert » (alimenté par des processus de pompage et soumis à une relaxation), pour un mode propre d'une cavité électromagnétique avec des pertes dans la paroi. On présente également un modèle d'oscillateur harmonique amorti, entièrement soluble, à propos duquel le problème des moments d'ordre supérieur à deux des forces de Langevin est abordé ainsi que celui de leur caractère gaussien éventuel.

3) Dans la troisième partie du cours, le formalisme précédent est appliqué à l'étude des fluctuations dans les masers et les lasers.

Dans le modèle choisi, le système S est formé par un mode propre d'une cavité électromagnétique dans laquelle se trouvent des atomes actifs, le réservoir R est l'ensemble des autres systèmes responsables du pompage, de l'amortissement et des fluctuations de S : processus de pompage et de relaxation pour les atomes actifs, pertes dans les parois et rayonnement du corps noir pour le mode propre de la cavité. Les équations de Langevin-Mori des observables de S sont écrites, compte tenu du couplage atomes actifs-mode de la cavité et les divers coefficients de diffusion calculés en fonction des taux de relaxation et de pompage introduits dans le modèle de manière phénoménologique.

Une discussion qualitative des équations ainsi obtenues (traitant les diverses observables comme des nombres et non comme des opérateurs) permet tout d'abord de dégager les paramètres physiques importants (taux d'émission spontanée des atomes actifs dans le mode, inversion critique au delà de laquelle les gains sont supérieurs aux pertes), les approximations intéressantes (élimination adiabatique des variables atomiques qui varient beaucoup plus vite que celles du mode de la cavité au voisinage de l'inversion critique et qui suivent donc instantanément les variations lentes du champ laser,

en lui étant en quelque sorte « asservies »). L'allure générale des phénomènes lorsqu'on traverse l'inversion critique est discutée : ralentissement critique quand on s'approche du seuil, puis apparition d'un champ dans la cavité quand on dépasse le seuil, avec stabilisation de l'amplitude et diffusion de la phase. L'analogie avec une transition de phase du deuxième ordre est soulignée.

On reprend ensuite le problème de manière plus quantitative et on établit, après élimination adiabatique des variables atomiques, l'équation de Langevin à laquelle obéissent les opérateurs  $a$  et  $a^+$  du mode laser. On étudie à partir de cette équation trois grandeurs physiques intéressantes : le nombre moyen de photons en régime stationnaire, qui est proportionnel à la puissance de sortie du laser ; la fonction de corrélation du champ électromagnétique, dont la transformée de Fourier donne la répartition spectrale du rayonnement émis ; la fonction de corrélation de l'intensité. Deux approximations différentes sont utilisées : l'approximation linéaire au-dessous du seuil, qui revient à négliger les effets de saturation atomique, ce qui est tout à fait justifié compte tenu de la faible intensité lumineuse ; l'approximation quasi-linéaire au-dessus du seuil, qui revient à linéariser les équations au voisinage du point de fonctionnement. Au voisinage immédiat du seuil, aucune des deux approximations précédentes n'est justifiée, compte tenu de l'importance des fluctuations. Il faut alors passer par l'intermédiaire de l'équation de Fokker-Planck à laquelle satisfait la distribution de quasi-probabilité  $P(\alpha)$  du mode laser, établir cette équation à partir de l'équation de Langevin et la résoudre. Il est possible, ainsi, d'obtenir la courbe complète donnant en fonction de l'inversion atomique, la puissance de sortie du laser, de déterminer l'influence des divers processus physiques (émission spontanée, rayonnement du corps noir) sur la largeur spectrale du rayonnement émis, de comprendre le ralentissement puis l'accélération des fluctuations d'intensité.

Le cours se termine enfin par une revue des expériences (dont certaines, très récentes, viennent seulement d'être publiées) qui ont permis de tester les modèles théoriques précédents : mesure de l'intensité laser en fonction de l'inversion atomique, étude de la structure fine des fonctions de corrélation du champ laser et de l'intensité mettant en évidence, au voisinage du seuil, l'existence de plusieurs modes de relaxation avec des constantes de temps et des poids en accord avec les prédictions de l'équation de Fokker-Planck, évolution de la statistique du rayonnement quand on traverse le seuil. La transition laser est certainement l'une des transitions du deuxième ordre qui ont été étudiées le plus en détail, tant sur le plan théorique qu'expérimental.

C. C.-T.

*Enseignement à l'Université scientifique et médicale de Grenoble*

Dans le cadre de la Chaire de Physique atomique et moléculaire du Collège de France, le professeur a donné les quatre conférences suivantes à Grenoble, au cours du mois de mai 1979 :

- 1 - Le concept de photon. Est-il utile ou indispensable ?
- 2 - Précession de Rabi et décroissance exponentielle de Weisskopf-Wigner. Comment peut-on passer continûment d'un concept à l'autre ?
- 3 - Atomes dans des rayonnements laser intenses.
- 4 - La Physique atomique et les problèmes fondamentaux. Contribution de ces dix dernières années.

SÉMINAIRES 1978-1979

Les séminaires donnés au Collège de France ont été consacrés à la présentation et à la discussion d'un certain nombre de développements récents en Physique atomique et moléculaire.

Six séminaires ont été organisés :

H. WELLING (Technische Universität Hannover), *Color-center lasers and Dimer lasers*.

C. LHULLIER (Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure, Paris), *L'hélium 3 polarisé : un « nouveau » fluide quantique*.

P.E. TOSCHEK (Université de Heidelberg), *Electrodynamic confinement of single ions for spectroscopy*.

S. REYNAUD (Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure, Paris), *Compensation de l'élargissement Doppler par des déplacements lumineux dépendant de la vitesse*.

J.L. VIALLE (Laboratoire Aimé-Cotton, Orsay), *Expériences récentes d'ionisation par champ d'états de Rydberg dans des alcalins - Effets liés à la dégénérescence des niveaux*.

M.A. BOUCHIAT (Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'Ecole Normale Supérieure, Paris), *Etat actuel de la recherche expérimentale d'une violation de la parité en physique atomique*.

#### ACTIVITÉ SCIENTIFIQUE

M. Claude COHEN-TANNOUJJI effectue ses recherches au sein du Laboratoire de Spectroscopie Hertzienne de l'École Normale Supérieure. Il y dirige les travaux d'une petite équipe de chercheurs et participe, sur le plan théorique, à quelques-uns des autres projets en cours au Laboratoire.

Ce Laboratoire, qui est associé au C.N.R.S., est implanté géographiquement, d'une part au Laboratoire de Physique de l'École Normale Supérieure (24, rue Lhomond), d'autre part à l'Université Paris VI (quai Saint-Bernard). Il est dirigé par M. Jean BROSSEL, Professeur à l'Université Paris VI, membre de l'Institut.

Le personnel du Laboratoire comporte dix enseignants-chercheurs (professeurs, maîtres de conférences, maîtres-assistants, agrégés-préparateurs), vingt-trois chercheurs au C.N.R.S. (directeurs, maîtres, chargés et attachés de recherche), cinq chercheurs étrangers et sept élèves de grandes écoles effectuant des stages ou des thèses de 3<sup>e</sup> cycle, vingt-cinq techniciens et administratifs.

Le Laboratoire est constitué d'une dizaine d'équipes de recherches, comprenant trois à sept chercheurs, et étudiant divers problèmes de physique atomique et moléculaire centrés autour des deux thèmes généraux suivants :

- développement des méthodes optiques de la physique atomique et moléculaire,
- diffusion de la lumière laser par un fluide.

Un rapport d'activité scientifique est rédigé tous les ans pour le Comité National du C.N.R.S. Il contient une analyse détaillée des problèmes scientifiques abordés par chaque équipe et un bilan des résultats nouveaux obtenus. Nous nous contenterons donc ici de donner la liste des publications du Laboratoire en 1978, ainsi que celles des thèses (de 3<sup>e</sup> cycle et d'Etat) soutenues au cours de cette même année.

#### PUBLICATIONS DU LABORATOIRE EN 1978

J. DUPONT-ROC, C. FABRE and C. COHEN-TANNOUJJI, *Physical interpretations for radiative corrections in the non-relativistic limit* (*J. Phys. B*, 11, n° 4, 563, 1978).

M.A. BOUCHIAT and D. LANGEVIN, *Relation between molecular properties and the intensity scattered by a liquid interface* (*J. of Coll. and Interface Science*, 63, n° 2, 193, feb. 1978).

M. BERARD and P. LALLEMAND, *Influence of the use of approximate trajectories for binary collision calculations* (*J. Quant. Spectr. Radiat. Transfer*, 19, 387, 1978).

M. PINARD, C.G. AMINOFF and F. LALOË, « *Double-Michelson* » mode selector and pressure scanning of a CW single-mode dye laser (*Appl. Phys.*, 15, 371, 1978).

A.M. CAZABAT, *Diffusion Rayleigh-Brillouin par les gaz polyatomiques dans le domaine non hydrodynamique* (*C.R.A.S.*, 286 B, 363, 19-6-78).

A.M. CAZABAT, M. LAGÜES, D. LANGEVIN, R. OBER et C. TAUPIN, *Etude, par diffusion de la lumière, d'une micro-émulsion eau-cyclohexanedodecyl sulfate de sodium-pentanol I* (*C.R.A.S.*, 287 B, 25, 10-7-78).

M. LEDUC, C. WEISBUCH, *CW dye laser emission beyond 1 000 nm* (*Optics Comm.*, 26, n° 1, 78, July 1978).

K. THYAGARAJAN and P. LALLEMAND, *Determination of the thermal diffusion ratio in a binary mixture by forced Rayleigh scattering* (*Optics Comm*, 26, n° 1, 54, July 1978).

C. FABRE, S. HAROCHE and P. GOY, *Millimeter spectroscopy in sodium Rydberg states : quantum-defect, fine-structure, and polarizability measurements* (*Phys. Rev. A*, 18, n° 1, 229, July 1978).

M. GROSS, J.M. RAIMOND and S. HAROCHE, *Doppler beats in superradiance* (*Phys. Rev. Letters*, 40, n° 26, 1711, 26 June 1978).

C. DESTOR, D. LANGEVIN, F. RONDELEZ, *Cross-over between semi-dilute and dilute solution behaviour of flexible polymer as determined by ultraviolet spectrometry* (*Polymer Letters*, 16, 229, 1978).

D. LANGEVIN, F. RONDELEZ, *Sedimentation of large colloidal particles through semi-dilute polymer solutions* (*Polymers*, 19, 875, 1978).

M. GLASS-MAUJEAN, J.P. DESCOUBES, *Stark induced anticrossings on H and D. I) Theoretical study* (*J. Phys. B*, 11, 413, 1978).

M. GLASS-MAUJEAN, T. DOHNALIK, L. JULIEN, *Stark induced anticrossings on H and D. II) Experimental study. Measurement of the  $n^2P_{3/2} - n^2D_{3/2}$  Lamb-shift on H ( $n = 3$  and 4)* (*J. Phys. B*, 11, 421, 1978).

M. GLASS-MAUJEAN, *Electron impact dissociation of H<sub>2</sub> and D<sub>2</sub> studied from anticrossing signals and by Doppler profile technique* (*J. Phys. B*, 11, 431, 1978).

M. GLASS-MAUJEAN, J. BRETON, P.M. GUYON, *Accidental predissociation of the  $(4p\pi)^1\Pi_u^+$  state of  $H_2$*  (Phys. Rev. Letters, 40, 181, 1978).

S. HAROCHE, *Des atomes géants* (La Recherche, 9, 92, 733, sept. 1978).

F. BIRABEN et K. BEROFF, *Hyperfine interaction in the  $4D_{3/2}$  and  $4D_{5/2}$  levels of sodium* (Phys. Letters, 65 A, 209, 1978).

F. BIRABEN, K. BEROFF, E. GIACOBINO et G. GRYNBERG, *Relaxation of the  $4D_{3/2}$  and  $4D_{5/2}$  levels of sodium atom perturbed by noble gases* (J. Phys., 39, L-108, 1978).

F. TREHIN, G. GRYNBERG et B. CAGNAC, *Synchronisation d'un laser à colorant en impulsions par injection d'un faisceau laser continu de grande pureté spectrale* (Rev. Phys. Appl., 13, 307, 1978).

G. GRYNBERG, F. BIRABEN, M. KOLWAS and B. CAGNAC, *Comment on collision-processes involved in « Two-photon near-resonance light scattering from an atomic level »* (Phys. Rev. A, 18, n° 5, nov. 1978).

B. CAGNAC (Kvantovaya Elektronika, 5 (8), 1651, 1978).

C. COHEN-TANNOUJJI, F. HOFFBECK and S. REYNAUD, *Compensating Doppler broadening with light-shifts* (Optics Comm., 27, n° 1, 71, oct. 1978).

M. SILVERMAN, S. HAROCHE and M. GROSS, *General theory of laser-induced quantum beats. I) Saturation effects of single laser excitation. II) Sequential laser excitation; effects of external static fields* (Phys. Rev. A, 18, n° 4, 1507-1517, oct. 1978).

J.C. LEHMANN, *Recent developments in the spectroscopy of small molecules* (Rep. Prog. Phys., 41, 1609, 1978).

J.M. RAIMOND, M. GROSS, C. FABRE, S. HAROCHE and H.H. STROKE, *Laser measurement of intensity ratio anomalies in principal series doublets of caesium Rydberg states: does the  $D_1$  line vanish?* (J. Phys. B, 11, n° 24, L-765, 1978).

C. ALLAIN, H.Z. CUMMINS and P. LALLEMAND, *Critical slowing down near the Rayleigh-Benard convective instability* (J. de Phys. Lettres, 39, n° 24, L-473, 15 déc. 1978).

J.C. LEHMANN, *Iodine, a test molecule in modern spectroscopy* (Contemp. Phys., 19, n° 5, 449, 1978).

THÈSES

3<sup>e</sup> cycle

Valérie LEFEVRE-SEGUN, *Etude de l'échange de métastabilité et des collisions dépolarisantes agissant sur le niveau métastable  $^3P_2$  du xénon et du krypton.*

Karine BEROFF, *Spectroscopie de haute résolution dans le néon et le sodium par absorption à deux photons sans élargissement Doppler.*

François HOFFBECK, *Etude théorique d'une nouvelle méthode de compensation de l'effet Doppler utilisant les déplacements lumineux.*

D'Etat

Catherine ALLAIN, *Etude du couplage entre les modes de relaxation internes et le mode de diffusion de la chaleur dans les fluides visqueux.*

Jacques VIGUÉ, *Application des méthodes du pompage optique aux molécules diatomiques. Mise en évidence des effets d'interférence entre prédisso-ciations.*

ACTIVITÉS DIVERSES, CONGRÈS, CONFÉRENCES

A la demande de la Société Européenne de Physique, présentation d'une série de conférences sur les interactions matière-rayonnement dans plusieurs pays européens :

- Angleterre (Londres), février 1978 ;
- Suède (Lund, Uppsala, Göteborg), mai 1978 ;
- Roumanie (Bucarest), septembre 1978 ;
- Hongrie (Budapest), septembre 1978.

Conférence invitée à une réunion de discussion de la Royal Society sur la diffusion de la lumière en Physique, Chimie et Biologie (Londres, février 1978), *Photon antibunching in single atom fluorescence.*

Conférence invitée au Colloque de la Société Française de Physique sur la Spectroscopie résolue dans le temps (Lille, juin 1978), *Franges de Ramsey optiques.*

Participation au 17<sup>e</sup> Congrès international Solvay (Bruxelles, novembre 1978).

Séminaire donné à Amsterdam au Fom-Institute voor Atoom-en Molecuulfysica (février 1978), *Resonance fluorescence in intense laser beams*.

#### DISTINCTIONS

Médaille et Prix Thomas Young 1979 décerné par The Institute of Physics (Angleterre).