



HAL
open science

Theoretical determination of optical properties for sapphire doped with titanium from its microscopy and analysis of its capabilities for laser without population inversion

Antonio da Silva

► **To cite this version:**

Antonio da Silva. Theoretical determination of optical properties for sapphire doped with titanium from its microscopy and analysis of its capabilities for laser without population inversion. Optics [physics.optics]. Université Paris Saclay (COMUE), 2017. English. NNT : 2017SACLX075 . tel-01668566

HAL Id: tel-01668566

<https://pastel.hal.science/tel-01668566>

Submitted on 20 Dec 2017

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

NNT: 2017SACLX075

**THÈSE DE DOCTORAT
DE L'UNIVERSITE PARIS-SACLAY**

préparée à

L'École Polytechnique

ÉCOLE DOCTORALE N°572
École Doctorale Ondes et Matière (EDOM)

Spécialité de doctorat : Physique

par

Antonio DA SILVA

Détermination théorique des propriétés optiques du saphir dopé au titane à partir de sa microscopie et analyse de ses capacités de laser sans inversion de populations

Thèse présentée et soutenue à Palaiseau, le 10 Novembre 2017

Composition du Jury :

M. Jacques ROBERT	Président du Jury	Université Paris-Saclay
Mme Sophie KAZAMIAS	Rapporteur	Université Paris-Saclay
M. Frank ROSMEJ	Rapporteur	Université Pierre & Marie Curie
M. Georges BOULON	Examinateur	Université Claude Bernard Lyon 1
M. Gilles CHERIAUX	Directeur de thèse	National Energetics
M. Jean-Marcel RAX	Co-directeur de thèse	Ecole Polytechnique

Remerciements

Cette thèse s'est déroulée au Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA) de l'ENSTA ParisTech. Je remercie M. Gilles Chériaux pour m'avoir donné l'opportunité de travailler sur le sujet de recherche du présent exposé.

Le financement de cette thèse n'aurait pu être assuré sans le soutien de la Direction Générale de l'Armement. J'ai eu la chance de participer au JNCO 2015 à Rennes et au 7^{ième} symposium international sur les matériaux optiques tenu à Lyon du 29 février au 4 mars 2016 afin de présenter mes travaux.

Je remercie les Professeurs Sophie Kazamias et Frank Rosmej pour avoir accepté d'être les deux rapporteurs de ce travail. Je suis également reconnaissant aux Professeurs Jacques Robert et Georges Boulon d'avoir bien voulu examiner le manuscrit et participer au jury de cette thèse. Je remercie de même le Professeur Jean-Marcel Rax pour ses éclaircissements quant à la théorie physique.

J'exprime ma gratitude aux chercheurs de l'Institut Lumière Matière de Lyon pour les échanges scientifiques fructueux que j'ai eus avec ceux-ci. J'espère avoir levé toutes leurs objections quant à la dernière partie de mes travaux.

Ma reconnaissance va aussi à M. Stefan Haessler pour son aide au maniement du logiciel Latex, à M. Davide Boschetto pour sa contribution et sa relecture des épreuves d'un article publié dans *Optical Materials* et à Mme Aline Vernier pour son travail de relecture du même article.

J'exprime enfin un grand merci à M. Antoine Rousse, directeur du LOA, pour son permanent soutien moral et à M. Lionel Henry de la DGA qui a cru en mes capacités. Je remercie également tous les autres membres du Laboratoire.

Resumé

La thèse ici exposée a trait à l'étude des grands cristaux de Ti :saphir, matériau de prédilection pour la cavité des lasers de très hautes puissances crête. Elle est constituée de deux axes : la modélisation analytique des propriétés photo-physiques du matériau actif et l'investigation de ses capacités éventuelles pour un effet laser sans inversion de populations. Cet effet permettrait entre autres de réduire la puissance de pompage ou de replacer dans la course à la lumière extrême d'autres cristaux que le Ti :saphir qui ne possèdent pas les extraordinaires propriétés thermiques de ce dernier. La thèse ici défendue est qu'il serait possible de diversifier les longueurs d'onde de la lumière extrême, alors différentes de la longueur d'onde d'émission la plus probable du Ti :saphir qui est située à environ 800 nm, tout en conservant les rendements de puissance de sortie.

La spectroscopie quantitative du Ti :saphir a été modélisée analytiquement au moyen d'un modèle simple de Huang-Rhys pour le profil spectral des intensités de fluorescence et des sections efficaces d'émission stimulée et en exploitant une hypothèse de superposition de bandes simples. Cette spectroscopie est réputée gouvernée par un moment dipolaire électrique résiduel. Une nouvelle prise en compte de l'interaction entre les impuretés titane est envisagée par l'établissement d'une formule pour la polarisabilité isotropique de cet ion. Cette formule par l'application d'une relation de Lorentz à un réseau cubique, ce qui constitue néanmoins une approximation, produit une expression pour l'indice de réfraction total du Ti :saphir en fonction de la concentration de dopant. La présente approche autorisera la réalisation d'études paramétriques ultérieures.

La condition de seuil de l'effet laser pour un système à deux niveaux électroniques est exposée et il est montré qu'elle est unique pour tous les lasers : à état solide ou avec injection de matière dans la cavité. Cette condition est comparée à celle généralisée établie pour un système à trois niveaux électroniques comprenant deux sous-niveaux proches d'énergies inférieures à un troisième niveau. Un cristal de Ti :saphir possédant la symétrie basse dite trigonale dispose d'une telle configuration à trois niveaux. Une esquisse de dispositif expérimental définissant les différents champs électriques du problème est don-

née. La nouveauté est ici d'irradier par une onde progressive infrarouge le matériau actif de la cavité avec une longueur d'onde accordée à la pulsation de transition atomique des deux sous-niveaux proches. L'effet laser sans inversion de populations comme concept n'est donc examiné que théoriquement. Ses équations d'évolution sont établies et une résolution de ces dernières est menée en termes de calcul de la condition de seuil d'effet laser généralisée. Il est montré qu'elle s'exprime à partir d'un critère général dégagé par nos travaux. Une application numérique basée sur le Ti :saphir est produite. Elle fournit les caractéristiques du champ électrique infrarouge de cohérence appliqué entre les deux proches sous-niveaux. Nous avons aussi proposé un cahier des charges que les matériaux actifs devraient respecter au regard de l'application du concept novateur d'effet laser sans inversion de populations.

Table des figures

2.1	Diagramme d'énergies illustrant le principe de Franck-Condon.	29
2.2	Ion titane dans le corindon : une symétrie octaédrique approchée. L'ion central est le titane entouré de six ions oxygène.	31
3.1	Modélisation : section efficace d'absorption stimulée, selon l'axe c , en cm^2 en fonction de la longueur d'onde en nm, à température ambiante (à partir de l'équation (3.86))	62
3.2	Fluorescence : modélisation du profil spectral à deux températures 200 et 300 K, à partir de l'équation (3.91).	64
3.3	A température ambiante, sections efficaces d'émission stimulée en cm^2 en fonction de la longueur d'onde en nm. Selon les deux polarisations π et σ . Les modèles sont issus de l'équation (3.87) et les courbes expérimentales proviennent de la référence [37]	66
3.4	Sections efficaces d'émission stimulée en cm^2 en fonction de la longueur d'onde en nm et aux trois températures 300, 200 et 100 K. Selon la polarisation π . La modélisation est issue de l'équation (3.87)	66
3.5	Temps d'émission spontanée en fonction de la température. La courbe expérimentale est issue de la référence [18]. La courbe théorique, uniquement valide en dessous de 200 K, est tracée à partir de l'équation (3.79). Nous observons un palier en dessous de 200 K, pour lequel l'efficacité quantique est très proche de 1.	67
4.1	Energies du système à quatre niveaux.	75
5.1	Energies du système à deux niveaux.	91
6.1	Energies du système à trois niveaux et notations. Un champ électrique de nature infrarouge ou radiofréquence habille les niveaux 2 et 3. La transition laser dans le rouge a lieu entre les niveaux 1 et 2/3.	125

6.2	Pompe et relaxations pour les inversions de populations.	130
6.3	Configuration à trois niveaux. Définition du repère pour les champs électriques.	133
6.4	Partition de l'axe du temps en deux périodes.	144
6.5	Dispositif expérimental. Représentation schématique.	146
6.6	Diagramme à quatre niveaux (symétrie octaédrique). Notations selon Cagnac et al. Les niveaux 3 et 2 correspondent à E_g , 1 et 0 à T_{2g}	147
6.7	Décohérence entre les deux sous-niveaux proches.	152

Liste des tableaux

3.1	Moments dipolaires électriques pour le Ti :saphir (ref[16])	52
3.2	Valeurs des forces d'oscillateur	68
6.1	Diagramme d'énergies électroniques	146

Table des matières

1	Introduction	1
2	Des outils théoriques	9
2.1	Couplage Électromagnétique Minimal en électrodynamique	10
2.1.1	Les équations du champ électromagnétique microscopique	10
2.1.2	Un choix de jauge et ses conséquences	13
2.1.3	Un schéma de quantification	15
2.1.4	Application à un système de charges électriques	16
2.1.5	Quantification du champ électromagnétique en absence de charges	17
2.1.6	Particules chargées dans un champ électromagnétique	22
2.2	La méthode de la résolvante	24
2.2.1	Définition de la résolvante	24
2.2.2	Approche non perturbative de la durée de vie des états excités	25
2.3	Opérateur matrice densité	27
2.3.1	Définition de cet opérateur	27
2.3.2	Équation d'évolution pour la matrice densité	28
2.4	Principe de Franck-Condon	28
2.5	Symétries cristallines	30
2.5.1	La symétrie octaédrique	30
2.5.2	La symétrie trigonale	30
3	Une transition dipolaire électrique résiduelle	35
3.1	Règle de Laporte et sa relaxation justifiée	36
3.1.1	Hamiltonien initial	37
3.1.2	Un changement de représentation de l'Hamiltonien initial	38
3.1.3	Des kets propres de H_0	40
3.1.4	Introduction de la règle de Laporte	42
3.2	Émission spontanée pour une transition dipolaire magnétique	44

3.3	Principales hypothèses de calcul	47
3.3.1	Une transition radiative gouvernée par un moment dipolaire électrique résiduel	47
3.3.2	L'approximation de Born-Oppenheimer?	48
3.3.3	Les formes spectrales pour les transitions radiatives	49
3.3.4	Une levée complète de dégénérescence?	50
3.3.5	Une faible concentration de dopant titane	51
3.4	Spectroscopie à partir de la force d'oscillateur	52
3.4.1	Les constantes des moments dipolaires électriques	52
3.4.2	Présentation du calcul	53
3.5	Spectroscopie à partir du temps d'émission spontanée	54
3.5.1	Première innovation	54
3.5.2	Influence de l'indice de réfraction du saphir	57
3.5.3	Seconde innovation	58
3.5.4	Détermination du facteur X et de la quantité $2A^2 + B^2$	61
3.6	Évaluation des sections efficaces	61
3.6.1	Pour l'absorption stimulée	61
3.6.2	Pour l'émission stimulée	64
4	Modélisations de l'indice de réfraction	73
4.1	L'indice de réfraction modélisé	74
4.1.1	Un système à quatre niveaux : ses hypothèses	74
4.1.2	Mise en équations	75
4.1.3	Résolution du système des équations de cohérence	77
4.2	Une piste théorique à approfondir	80
4.2.1	Présentation de la modélisation	80
4.2.2	L'équation de base	84
4.2.3	Que faire pour résoudre cette équation?	85
4.3	Un système totalement quantifié; quel est son Lagrangien?	85
5	Le système laser à deux niveaux	89
5.1	Deux niveaux interagissent avec un champ électrique	90
5.1.1	Définition de la pulsation de Rabi	90
5.1.2	Systèmes d'équations de Bloch et leurs solutions	93
5.2	Équations du laser à deux niveaux; selon H. Haken	95
5.2.1	Equations de la matière	95

5.2.2	Equation pour le champ électrique total	99
5.2.3	Application de l'approximation séculaire	102
5.2.4	Application de l'approximation de l'amplitude variant lentement	103
5.3	Le seuil laser au moyen d'une équation séculaire	105
5.4	Seuil d'un laser à deux niveaux selon Scully et al.	107
5.4.1	Système d'équations pour la matrice de population	107
5.4.2	Résolution du système pour la matrice population : une équation de van der Pol	109
5.5	L'approche totalement quantique	112
5.5.1	Les équations du laser à deux niveaux revisités	112
5.5.2	Le seuil laser revisité par une approche totalement quantique	116
6	Le système à trois niveaux d'énergie	123
6.1	Équations du laser à état solide	125
6.1.1	Introduction des variables	126
6.1.2	Résolution de l'équation de Schrödinger	127
6.1.3	Processus de pompe et de relaxation pour les inversions de populations	130
6.1.4	Description des champs électriques	132
6.1.5	Équation de propagation pour la grandeur E_λ et formulation du vecteur polarisation	135
6.1.6	Application de l'approximation séculaire	136
6.1.7	Approximation de l'amplitude variant lentement	141
6.1.8	Partition de l'axe du temps en deux périodes	143
6.2	Proposition de dispositif expérimental	145
6.2.1	Descriptif de la figure (6.5)	145
6.2.2	Diagrammes énergétiques	145
6.2.3	Fonctionnement de la cavité en régime continu	147
6.3	En dessous du seuil de l'effet laser et début de solution	149
6.3.1	Estimations quantitatives des grandeurs de fonctionnement	149
6.3.2	Interprétation de la décohérence entre les deux sous-niveaux	151
6.3.3	La méthode de l'équation "séculaire"	153
6.4	Le système à trois niveaux selon Scully et al.	155
6.4.1	Seuil classique pour une population sans faisceau de cohérence	156
6.4.2	Seuil de l'effet laser lorsqu'un faisceau de cohérence opère	159
6.4.3	Applications numériques et interprétations	161

6.4.4	Une condition nécessaire sur les inversions de populations	163
6.4.5	Correction apportée à la probabilité de pompage et conclusions partielles	164
6.5	Une adaptation du calcul de H.Haken	168
6.5.1	Solutions pour les cohérences α_μ et β_μ	168
6.5.2	La condition de seuil de l'effet laser revisitée	170
7	Conclusion	175
7.1	Recommandations pour la suite des travaux	175
7.1.1	Une méthodologie systématique	175
7.1.2	Les prémisses de calculs	176
7.2	Des résultats	177
7.3	Des perspectives	179
7.3.1	Celles ne concernant pas le concept LWI	179
7.3.2	D'un concept, proposons une expérience	180
7.3.3	Une perspective majeure motivant le présent travail de thèse	181
A	Résolution du système laser à trois niveaux	183
B	Une publication pour validation	187
	Bibliographies	193

Chapitre 1

Introduction

Depuis le début des années 90, le saphir dopé aux ions titane est un matériau de choix pour la génération et l'amplification d'impulsions ultra-courtes. D'une part des impulsions de durée de l'ordre de 5 femtosecondes ont été générées dans une cavité. D'autre part l'amplification jusqu'à une énergie de 60 Joules d'impulsions d'une durée inférieure à une trentaine de femtosecondes a été obtenue. Actuellement plusieurs programmes visent à construire des systèmes complexes dont les caractéristiques finales seront de 10 PW; Apollon en France visant 150 J en 15 fs et ELI-NP en Roumanie visant 220 J en 22 fs. Cela nécessite le recours à des cristaux de Ti :Saphir de grand diamètre (20 cm) dont les propriétés spectroscopiques telles que l'indice de réfraction ou la section efficace de gain peuvent être différentes de celles présentées par des cristaux de plus petite dimension déjà utilisés auparavant. Des variations de l'indice peuvent affecter la qualité temporelle des impulsions laser sur la cible et une différence de section efficace de gain peut entraîner une différence d'énergie. Il s'avère donc primordial de pouvoir anticiper de tels changements.

Les travaux réalisés pendant ma thèse ont eu pour but de simuler certaines des constantes optiques nécessaires pour mieux maîtriser la simulation numérique des lasers de très hautes puissances crête.

Le Ti :saphir a été exhaustivement étudié théoriquement et expérimentalement dans les années 80. Ainsi les ions métal-transition dans des matrices diélectriques ont été traités selon la théorie des orbitales moléculaires ou des ligands. C'est le cas du Ti^{3+} de configuration électronique $3d^1$ dans le saphir. Il n'y a plus eu de nouvelles caractérisations expérimentales ou de modélisations théoriques sur ce matériau depuis cette période sachant qu'actuellement les procédés de croissance peuvent être sensiblement différents et les cristaux de dimensions bien supérieures avec des taux de dopage eux aussi différents.

Des problèmes sur la détermination des propriétés spectroscopiques du Ti :saphir restaient en suspens. Il n'y a pas eu un traitement spécifique réalisé sur la prise en compte des interactions entre les impuretés Ti^{3+} dans la matrice hôte. Aussi, les formules des sections efficaces d'absorption ou d'émission stimulées ainsi que la forme spectrale de la fluorescence ne comprenaient pas de facteur la concentration de dopant titane. Bien que le fonctionnement des lasers de très hautes puissances crête doit pouvoir être réalisé pour un matériau présentant une très importante concentration de dopant, cette prise en compte d'un tel facteur n'a pas été effectuée à ce jour selon notre connaissance. De même, les formules de l'indice de réfraction total du Ti :saphir en fonction de la concentration de dopant n'étaient pas connues.

En outre dans cette thèse, la thématique d'une absorption résiduelle à 800 nm a été envisagée. L'explication d'une influence due à des impuretés Ti^{4+} de configuration électronique $3d^0$, proposée dans la littérature, a été examinée à la lumière de la théorie des orbitales moléculaires, mais n'a pas pu conduire à une résolution de cette thématique.

Mon travail de thèse a donc consisté à modéliser les interactions entre les impuretés de dopant titane dans la matrice de saphir. J'ai donc su donner la description d'un indice total de réfraction isotropique (je n'ai pas décrit la biréfringence du matériau) variant avec la concentration de dopant. Je n'ai pas entrevu, dans un premier temps, cette solution. Aussi, je me suis intéressé initialement à modéliser la spectroscopie du Ti :saphir, de configuration électronique $3d^1$, en m'appliquant au calcul du temps d'émission spontanée qui est fonction des forces de dipôles. J'ai pu pour cette théorie inclure les degrés de dégénérescence des états du titane dans le champ cristallin idoine, ce qui constitue une innovation ayant fait l'objet d'une publication.

La modélisation des formes spectrales pour la fluorescence et les sections efficaces d'émission stimulée a été menée au moyen d'une théorie simple et analytique de Huang-Rhys reposant sur deux paramètres (S associé au couplage électron-phonon et ω_l représentant la pulsation d'un unique type de phonon effectif). J'ai alors évoqué le fait que ces deux paramètres varient avec de fortes concentrations de dopants impuretés. J'ai envisagé une piste pour la modélisation de ces interactions entre impuretés au moyen de cette théorie de Huang-Rhys.

Au cours de mes recherches j'ai trouvé un moyen de résoudre le calcul de l'indice de réfraction total. En négligeant la partie interaction de l'équation d'évolution de l'opérateur matrice densité et en assignant aux inversions de populations des valeurs constantes, j'ai su exprimer une formule pour cet indice en fonction de la concentration de dopant. Il restera à confronter une telle formulation à des données expérimentales lors de travaux

ultérieurs et perspectives.

J'ai exploité une configuration avec deux niveaux électroniques d'énergie. En admettant que les phénomènes vibroniques dédoublent ces niveaux électroniques, nous pouvons estimer que le diagramme résultant en énergie du Ti :saphir comprend quatre niveaux. C'est la situation que j'ai envisagée dans le traitement de l'indice de réfraction total. Du point de vue de la structure électronique, le cation Ti^{3+} était supposé sur un site de symétrie approchée octaédrique avec une levée partielle de la dégénérescence de l'ion libre en question. J'ai alors cherché à considérer un abaissement supplémentaire de la symétrie du site afin de rendre compte de la spectroscopie du Ti :saphir : des moments dipolaires électriques qualifiés de résiduels et une configuration à trois niveaux électroniques d'énergie. J'ai, par la suite, cherché à exploiter une telle configuration en envisageant de nouveaux phénomènes pour ce matériau stratégique qu'est le Ti :saphir.

La thèse que j'ai soutenue est que nous pourrions obtenir une diversification de la lumière extrême à des longueurs d'onde autres que celle de l'émission du Ti :saphir (environ 800 nm). En exploitant éventuellement une symétrie trigonale d'un champ cristallin influençant un atome d'impureté, je me retrouve dans une configuration à trois niveaux électroniques d'énergie comprenant deux sous-niveaux proches. L'idée que j'ai eue a alors été de mettre en œuvre un effet laser sans inversion de populations caractérisé par un pompage cohérent entre les deux sous-niveaux proches et une puissance de pompage corrélativement bien moindre dans le matériau laser à état solide (ce qui permettrait d'amenuiser les problèmes thermiques). Le Ti :saphir est bien le matériau de prédilection pour la lumière extrême. Mais j'ai soutenu au début de mes travaux que l'effet laser sans inversion de populations aurait été un concept qui aurait remis dans la course aux très hautes puissances crête d'autres cristaux. Ce nouvel effet dans les lasers à état solide affranchirait partiellement ces derniers des contraintes thermiques, parce que nous aurions besoin de moins pomper dans le matériau laser à état solide pour un même rendu de puissance de sortie. En fait, un abaissement de la puissance de pompage dans la cavité à état solide est un indice probant qu'un effet laser sans inversion de populations est à l'œuvre. Je mènerai des calculs pour cette configuration à trois niveaux électroniques (pour ce nouveau concept dans les matériaux cristallins) et j'établirai les nouvelles conditions de seuil d'effet laser.

L'idée maîtresse qui a guidé l'élaboration du présent exposé a été d'exploiter au maximum les propriétés spectroscopiques du Ti :saphir dans les configurations à deux et trois niveaux électroniques d'énergie. Je suis parti de la prise en compte des variations spa-

tiales de ces propriétés pour aboutir à un nouveau concept pour les lasers à état solide. Ce concept autoriserait un changement de la longueur d'onde pour la lumière extrême.

Le manuscrit est organisé selon les chapitres suivants :

Un premier chapitre introduit mon exposé.

Chapitre 2

J'explique différents formalismes. Le couplage électromagnétique minimal sera exploité dans l'Hamiltonien de perturbation au chapitre (3). La méthode de la résolvante autorise une évaluation des temps d'émission spontanée avec la prise en compte des dégénérescences des niveaux d'énergie. L'opérateur matrice densité dont j'exploiterai les équations d'évolution des éléments de matrice est présenté. Des rappels sur le principe de Franck-Condon et sur les deux symétries du champ cristallin du Ti :saphir octaédrique (une approximation utile) et trigonale (symétrie réelle du site du cation) sont effectués.

Chapitre 3

Je partais avec très peu de pistes pour l'établissement de l'indice de réfraction en fonction de la concentration de dopant. J'ai interrogé différents centres de recherche ; ils n'ont pas su me dire pourquoi ils ne considéraient qu'un seul électron de valence dans leurs calculs de spectroscopie. Aussi, j'ai décidé d'apporter une réelle réponse à cette question dans le chapitre (3). J'ai posé la règle de Laporte ainsi que sa relaxation, ce qui m'a permis d'évaluer les valeurs des moments dipolaires électriques résiduels. Ces valeurs de moments de l'ordre de 10^{-12} m ont été exploitées dans les applications numériques du chapitre (6). Dans le chapitre (3), je me suis attaché à établir les formules analytiques des sections efficaces d'émission stimulée à partir de la forme spectrale de la fluorescence. J'ai échoué à modéliser la section efficace d'absorption stimulée parce que je n'ai pas considéré l'effet Jahn-Teller. J'ai relié le temps d'émission spontanée du niveau e_g (issu d'une symétrie octaédrique) aux forces de dipôles. J'ai développé ces modélisations parce qu'initialement je n'avais pas entrevu comment évaluer l'indice de réfraction en fonction de la concentration des ions titane. J'ai cherché à contourner les difficultés et j'ai produit alors d'autres résultats.

De même, avant de considérer les phénomènes vibroniques du système et la relaxation de la règle de Laporte, j'ai établi le temps d'émission spontanée d'un système gouverné par une transition dipolaire magnétique. Notre observation est que plus la force d'oscillateur est faible, plus le temps d'émission spontanée augmente. J'ai progressivement pris conscience de l'importance des phénomènes vibroniques du système et de l'absence de centro-symétrie (parce que la symétrie du site du cation est trigonale) en

menant un calcul selon un moment dipolaire électrique qualifié de résiduel. J'ai enfin appliqué le formalisme de la résolvante pour les calculs des temps d'émission spontanée en tenant compte précisément des dégénérescences des niveaux d'énergie. Ce travail autorisera des études paramétriques en perspectives.

Chapitre 4

J'ai trouvé une manière de résoudre le système d'équations d'évolution des cohérences et des populations. Cette résolution est basée sur un système à deux niveaux électroniques d'énergie (système à quatre niveaux lorsque je tiens compte des phénomènes vibroniques du système qui dédoublent les niveaux électroniques). J'exploite l'approximation linéaire et je néglige les interactions « non-linéaires ». C'était là un aboutissement de mes recherches. Dans le reste du chapitre (4), je présente un essai qui reste pour l'instant infructueux basé sur le système une molécule d'ion titane entourée de six ions oxygène. J'ai posé une équation intégral-différentielle de Poisson en le vecteur potentiel. J'espère que sa résolution me fournira une relation de dispersion. A la fin du chapitre (4), j'ai pu atteindre un jalon important de mon travail. J'ai exploité le maximum, sur le plan théorique et de la modélisation analytique, que je pouvais tirer d'un site en symétrie octaédrique. Or comme pressenti au chapitre (3), la symétrie réelle du Ti :saphir est trigonale. J'ai alors cherché à exploiter un nouveau phénomène issu de cette configuration à trois niveaux électroniques d'énergie. Parce que j'étais sensibilisé aux problèmes de thermique des lasers de très hautes puissances crête suite au très fort pompage, je me suis demandé s'il était possible de réduire ce pompage pour un même rendu de puissance de sortie.

Chapitre 5

Au chapitre (5), j'ai rappelé toutes les méthodes (Haken et Scully) permettant de poser les équations du laser lorsque nous considérons un système à deux niveaux électroniques. Conformément aux calculs menés par Haken, la résolution d'une équation séculaire (déterminant nul d'un système) m'a fourni la condition de seuil de l'effet laser. Mon propos a été de montrer que cette condition de seuil, toujours pour une configuration à deux niveaux électroniques d'énergie, est la même pour tous les problèmes à deux niveaux. Étant donné que je savais à partir de la théorie du laser qu'une approche semi-classique était suffisante pour poser cette condition de seuil, je n'ai pas cherché à exploiter une théorie plus récente basée sur l'optique quantique relativiste. L'approche semi-classique est la plus simple et elle est pertinente. Ma contribution dans ce chapitre (5) est de montrer l'unicité de la condition de seuil de l'effet laser. J'ai bien détaillé ce chapitre parce que la méthode mise en œuvre a été adaptée au chapitre (6) pour la configuration de symétrie trigonale, donc à trois niveaux électroniques.

Chapitre 6

Je n'avais pas de modèle quant à l'établissement des équations du laser à état solide pour un système dont la symétrie du site du cation est trigonale. Je me suis inspiré de la méthode à deux niveaux d'énergie. J'ai considéré le concept d'une configuration à trois niveaux électroniques d'énergie avec un pompage infrarouge entre les deux sous-niveaux proches. J'ai proposé une résolution de ce système et établi la nouvelle condition de seuil d'effet laser dans un matériau actif à état solide. C'est une œuvre novatrice qui a essayé de prouver un abaissement du seuil de pompage pour l'effet laser dans la cavité contenant le Ti :saphir lorsqu'un pompage cohérent infrarouge est en action entre les deux sous-niveaux proches. La méthode de l'établissement de l'équation de van der Pol pour le mode de champ électrique dans le matériau laser en Ti :saphir afin de déterminer cette condition de seuil actualisée (étant donné que la résolution par une équation séculaire est impraticable) a été tentée. J'ai inclus en conclusion une catégorisation des matériaux actifs au regard d'une exploitation éventuelle de l'effet laser sans inversion de populations.

Le dernier chapitre conclut notre exposé et contient un article scientifique publié, une annexe de calcul et deux bibliographies.

Le fil rouge de tous mes travaux a été d'exploiter toutes les potentialités envisageables du Ti :saphir dont la symétrie trigonale qui n'a pas été suffisamment explorée à ce jour.

Je résume mes apports :

1. démonstration de la possibilité de ne retenir qu'un seul électron de valence pour le Ti :saphir ;
2. une équation générale entre le temps d'émission spontanée et les forces de dipôles (pour les moments dipolaires magnétique et électrique) ;
3. le calcul de la valeur des moments dipolaires électriques résiduels pour le Ti :saphir ;
4. une formule pour l'indice de réfraction total du Ti :saphir en fonction de la concentration de dopant titane ;
5. la convergence et la cohérence de toutes les conditions de seuil pour un système à deux niveaux électroniques d'énergie ;
6. le système des équations du laser à trois niveaux électroniques d'énergie et sa résolution ;
7. la nouvelle condition de seuil prédisant un abaissement du seuil de pompage conventionnel (et un critère dégagé à la suite de ces travaux) ;

8. une catégorisation des matériaux actifs au regard de l'effet laser sans inversion de populations.

J'ai inclus un glossaire des symboles pour chaque chapitre. Les termes non définis dans le corps du texte d'un chapitre sont indiqués dans un tel glossaire. Les notations sont homogènes au plus dans chaque chapitre.

Il faut noter que la recherche théorique sur le saphir dopé à l'ion titane n'a plus été intensément menée à partir des années quatre-vingt-dix. Il subsiste néanmoins des études sur la caractérisation de grands cristaux de Ti :saphir dans les années 2010 sans pourtant établir de théorie analytique telle que réalisée dans le présent travail.

Chapitre 2

Des outils théoriques

Sommaire

2.1 Couplage Électromagnétique Minimal en électrodynamique	10
2.1.1 Les équations du champ électromagnétique microscopique	10
2.1.2 Un choix de jauge et ses conséquences	13
2.1.3 Un schéma de quantification	15
2.1.4 Application à un système de charges électriques	16
2.1.5 Quantification du champ électromagnétique en absence de charges	17
2.1.6 Particules chargées dans un champ électromagnétique	22
2.2 La méthode de la résolvante	24
2.2.1 Définition de la résolvante	24
2.2.2 Approche non perturbative de la durée de vie des états excités	25
2.3 Opérateur matrice densité	27
2.3.1 Définition de cet opérateur	27
2.3.2 Équation d'évolution pour la matrice densité	28
2.4 Principe de Franck-Condon	28
2.5 Symétries cristallines	30
2.5.1 La symétrie octaédrique	30
2.5.2 La symétrie trigonale	30

Nous introduisons un ensemble d'outils théoriques et principes qui seront utilisés dans les chapitres suivants afin de modéliser les propriétés spectroscopiques du Ti :saphir. Nous chercherons ainsi à calculer les forces de dipôles et le temps d'émission spontanée de ce matériau. De plus, nous établirons les conditions de seuil de pompage pour les configurations à deux et trois niveaux électroniques d'énergie des lasers à état solide

comprenant un matériau actif en Ti :saphir. Il faut cependant préciser que le laser en Ti :saphir est réellement un système à quatre ou cinq niveaux provenant de deux ou trois niveaux électroniques dédoublés par les phénomènes vibroniques de ce matériau. Mais nous le traiterons comme un système à deux ou trois niveaux électroniques présentant un pompage externe (à ces deux ou trois niveaux électroniques) responsable d'une inversion de populations non-saturée.

Afin de satisfaire ces objectifs, nous devons introduire le couplage électromagnétique minimal en électrodynamique; il est appliqué dans l'Hamiltonien de perturbation de notre système. Nous évoquons la méthode de la résolvante exploitée dans la modélisation du temps d'émission spontanée lorsque nous prenons en compte correctement les degrés de dégénérescence des états. L'opérateur matrice densité et ses équations d'évolution seront de même exposés. Ce formalisme sera nécessaire dans de nombreux calculs : indice de réfraction total du Ti :saphir en fonction de la concentration de dopant, conditions de seuil de l'effet laser et équations de fonctionnement des lasers à état solide. De plus, nous indiquons le principe de Franck-Condon employé dans la détermination des propriétés photo-physiques du Ti :saphir et nous précisons les deux symétries cristallines (octaédrique et trigonale) évoquées abondamment dans tout notre exposé. A ces symétries sont ainsi associées les deux configurations électroniques (deux et trois niveaux) pour lesquelles nous établirons les conditions de seuil d'effet laser. Nous introduisons donc un « vocabulaire » adopté tout au long des lignes de ce travail de thèse.

2.1 Couplage Électromagnétique Minimal en électrodynamique

Nous démontrons la prescription du couplage électromagnétique minimal en électrodynamique. C'est un résultat qui est ici explicité. Nous évaluons aussi les Lagrangiens de divers systèmes dont un ensemble de particules chargées dans un champ électromagnétique. Cela nous fournira la prescription recherchée.

2.1.1 Les équations du champ électromagnétique microscopique

Ces équations sont exprimées en termes de champs microscopiques que nous notons par des symboles en minuscule :

$$\nabla \cdot \mathbf{b} = 0 \tag{2.1}$$

$$\nabla \wedge \mathbf{e} = -\frac{\partial \mathbf{b}}{\partial t} \quad (2.2)$$

(2.1) et (2.2) sont respectivement les équations du flux magnétique (MΦ) et de Maxwell-Faraday (MF). Elles sont intrinsèques et indépendantes des sources; nous les avons regroupées.

$$\nabla \cdot \mathbf{e} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (2.3)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{b} = \mu_0 \left[\mathbf{j} + \epsilon_0 \frac{\partial \mathbf{e}}{\partial t} \right] \quad (2.4)$$

(2.3) et (2.4) sont respectivement les équations de Maxwell-Gauss (MG) et de Maxwell-Ampère (MA).

Ces équations sont valables en toutes circonstances, que nous soyons dans le vide ou à l'intérieur d'un milieu matériel, à condition de faire intervenir comme sources de champ toutes les charges et courants, qu'ils soient libres ou liés. Nous supposons que les charges et courants liés appartiennent à des milieux qui peuvent être décrits en première approximation comme des distributions de dipôles électriques et magnétiques caractérisées d'un point de vue macroscopique par une polarisation \mathbf{P} et une aimantation \mathbf{M} .

Nous pouvons établir que la densité des charges liées s'exprime par :

$$\rho_P = -\nabla \cdot \mathbf{P} \quad (2.5)$$

La densité de courant lié est due pour une part aux courants d'aimantation :

$$\mathbf{j}_M = \nabla \wedge \mathbf{M} \quad (2.6)$$

En régime variable, nous incluons des courants de polarisation :

$$\mathbf{j}_P = \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} \quad (2.7)$$

En explicitant toutes les sources de champ, nous avons :

$$\boxed{\rho = \rho_{libre} - \nabla \cdot \mathbf{P} \quad \mathbf{j} = \mathbf{j}_{libre} + \frac{\partial \mathbf{P}}{\partial t} + \nabla \wedge \mathbf{M}} \quad (2.8)$$

Les équations de Maxwell sont modifiées en introduisant les excitations électrique \mathbf{D}

et magnétique \mathbf{H} définies par les relations phénoménologiques :

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad \mathbf{H} = \frac{\mathbf{B}}{\mu_0} - \mathbf{M} \quad (2.9)$$

Les équations de Maxwell-flux et de Maxwell-Faraday ne sont pas affectées par ces définitions. Celles de Maxwell-Gauss et de Maxwell-Ampère prennent les formes :

$$\nabla \cdot \mathbf{D} = \rho_{libre} \quad \nabla \wedge \mathbf{H} = \mathbf{j}_{libre} + \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} \quad (2.10)$$

Ce système d'équations permet, si les propriétés microscopiques des milieux étudiés peuvent se traduire par des relations constitutives simples, de calculer des champs électromagnétiques à partir des seules charges et courants libres, c'est-à-dire de façon purement macroscopique. Notre démarche est ici de prouver la substitution du couplage électromagnétique minimal, aussi nous raisonnons sur des champs microscopiques notés en minuscule en nous plaçant à l'intérieur d'un milieu matériel dont les constituants sont discrétisés. Le système des équations de Maxwell initial exprimé à partir des seuls champs \mathbf{e} et \mathbf{b} est donc exploité pour notre propos, même si ce système paraît quelque peu suranné.

ϵ_0 et μ_0 notent respectivement la permittivité et la perméabilité du vide. Nous gagnons la relation :

$$\epsilon_0 \mu_0 \cdot c^2 = 1 \quad (2.11)$$

Cette relation unifie les phénomènes électriques et magnétiques avec ceux qualifiés d'optiques. Les équations (MG) et (MA) dépendent de la densité de charges ρ et de la densité de courants \mathbf{j} . Ces densités sont formulées au moyen de la fonction de Dirac lorsque nous discrétisons la matière. Nous posons :

$$\rho \equiv \rho(\mathbf{r}) = \sum_{\alpha} e_{\alpha} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{q}_{\alpha}) \quad (2.12)$$

$$\mathbf{j} \equiv \mathbf{j}(\mathbf{r}) = \sum_{\alpha} e_{\alpha} \dot{\mathbf{q}}_{\alpha} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{q}_{\alpha}) \quad (2.13)$$

Nous sommions sur toutes les particules α , portant les charges e_{α} , localisées aux positions \mathbf{q}_{α} et possédant les vitesses $\dot{\mathbf{q}}_{\alpha}$.

Nous donnons deux résultats issus de l'analyse vectorielle importants quant à la ma-

nipulation des grandeurs potentielles du champ électromagnétique.

$$\text{Si } \nabla \cdot \mathbf{V} = 0 \exists \mathbf{W} \text{ tel que } \mathbf{V} = \nabla \wedge \mathbf{W} \quad (2.14)$$

$$\text{Si } \nabla \wedge \mathbf{V} = 0 \exists \phi \text{ tel que } \mathbf{V} = \nabla \phi \quad (2.15)$$

Les équations (2.1) et (2.14) permettent d'introduire un vecteur potentiel \mathbf{a} vérifiant la relation :

$$\mathbf{b} = \nabla \wedge \mathbf{a} \quad (2.16)$$

En outre, les équations (2.2), (2.15) et (2.16) permettent d'introduire un potentiel scalaire ϕ vérifiant la relation :

$$\mathbf{e} = -\nabla \phi - \frac{\partial \mathbf{a}}{\partial t} \quad (2.17)$$

Les champs microscopiques sont donnés en termes de grandeurs potentielles. Nous bénéficions de la liberté résultant d'un choix de jauge quant à l'expression des champs réels en fonction des potentiels. La transformation de jauge, où χ est une grandeur scalaire arbitraire, agit comme suit :

$$\mathbf{a} \rightarrow \mathbf{a}' = \mathbf{a} + \nabla \chi \quad (2.18)$$

$$\phi \rightarrow \phi' = \phi - \frac{\partial \chi}{\partial t} \quad (2.19)$$

Les potentiels $\{\mathbf{a}, \phi\}$ et $\{\mathbf{a}', \phi'\}$ donnent la même évaluation des champs électromagnétiques \mathbf{e} et \mathbf{b} quand les équations (2.16) et (2.17) sont exploitées. Nous venons d'utiliser les deux équations intrinsèques (M Φ) et (MF). Nous considérons maintenant les deux équations restantes (MG) et (MA). Elles permettent de formuler les équations aux dérivées partielles du second ordre entre les sources et les potentiels :

$$\Delta \phi + \frac{\partial(\nabla \cdot \mathbf{a})}{\partial t} = \frac{-\rho}{\epsilon_0} \quad (2.20)$$

$$\Delta \mathbf{a} - \nabla(\nabla \cdot \mathbf{a}) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{a}}{\partial t^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t} \nabla \phi = -\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \mathbf{j} \quad (2.21)$$

2.1.2 Un choix de jauge et ses conséquences

Les équations précédentes peuvent se simplifier au moyen d'un choix de jauge convenable. Nous adoptons la jauge de Coulomb :

$$\nabla \cdot \mathbf{a} = 0 \quad (2.22)$$

Les équations (2.20) et (2.21) prennent respectivement les formes :

$$\Delta\phi = \frac{-\rho}{\epsilon_0} \quad (2.23)$$

$$\Delta\mathbf{a} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{a}}{\partial t^2} = \frac{1}{c^2} \nabla \left(\frac{\partial \phi}{\partial t} \right) - \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \mathbf{j} \quad (2.24)$$

(2.23) est une équation de Poisson pour le potentiel scalaire. La jauge de Coulomb permet la séparation des aspects statique et dynamique des sources. Pour le champ des régions vides de charges, le potentiel scalaire est nul et nous obtenons à partir de (2.24) :

$$\Delta\mathbf{a} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{a}}{\partial t^2} = 0 \quad (2.25)$$

Une meilleure compréhension est possible grâce aux concepts de champs vectoriels transverse (à divergence nulle) et longitudinal (irrotationnel). Tout champ vectoriel \mathbf{V} se décompose en partie transverse \mathbf{V}^\perp et en partie longitudinale \mathbf{V}^\parallel , soit $\mathbf{V} = \mathbf{V}^\perp + \mathbf{V}^\parallel$.

Nous avons les propriétés : ($\nabla \cdot \mathbf{V}^\perp = 0$ et $\nabla \wedge \mathbf{V}^\perp = \nabla \wedge \mathbf{V}$) || ($\nabla \cdot \mathbf{V}^\parallel = \nabla \cdot \mathbf{V}$ et $\nabla \wedge \mathbf{V}^\parallel = 0$). Cette décomposition permet d'introduire les parties transverses et longitudinales des champs microscopiques. Avec des notations évidentes, les équations (MΦ), (MF) et (MG) se réécrivent :

$$\mathbf{b} = \mathbf{b}^\perp \quad (2.26)$$

$$\nabla \wedge \mathbf{e}^\perp = -\frac{\partial \mathbf{b}}{\partial t} \quad (2.27)$$

$$\nabla \cdot \mathbf{e}^\parallel = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (2.28)$$

(MA) se décompose selon les deux parties :

$$\nabla \wedge \mathbf{b} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial \mathbf{e}^\perp}{\partial t} + \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \mathbf{j}^\perp \quad (2.29)$$

$$0 = \frac{1}{c^2} \frac{\partial \mathbf{e}^\parallel}{\partial t} + \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \mathbf{j}^\parallel \quad (2.30)$$

En prenant la divergence de l'équation précédente, l'équation de conservation de la charge électrique est obtenue :

$$0 = \frac{\partial \rho}{\partial t} + \nabla \cdot \mathbf{j}^\parallel \quad (2.31)$$

Dans cette jauge de Coulomb, le vecteur potentiel est uniquement transverse. Nous pou-

vons reformuler l'équation (2.17) selon ses deux parties :

$$\mathbf{e}^\perp = -\frac{\partial \mathbf{a}}{\partial t} = -\dot{\mathbf{a}} \quad (2.32)$$

$$\mathbf{e}^\parallel = -\nabla\phi \quad (2.33)$$

En tenant compte de cette décomposition en parties transverse et longitudinale, l'équation (2.23) est inchangée et (2.24) fournit :

$$\Delta \mathbf{a} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{a}}{\partial t^2} = -\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \mathbf{j}^\perp \quad (2.34)$$

Aucune transformation de jauge ne modifie la partie transverse du potentiel vecteur. Ainsi l'addition du gradient d'une fonction scalaire arbitraire ajoute seulement une composante longitudinale à ce vecteur. \mathbf{a}^\perp est ici un invariant de jauge et nous posons l'équation fondamentale valable dans toutes les jauges :

$$\mathbf{e}^\perp = -\dot{\mathbf{a}}^\perp \quad (2.35)$$

En jauge de Coulomb, le vecteur potentiel sera quantifié; il en résultera entre autres l'apparition de photons transverses. Nous explicitons maintenant le schéma de quantification comme précisé dans [1] pour différents choix de système.

2.1.3 Un schéma de quantification

Notre point de départ sera la détermination initiale du Lagrangien. Nous le choisissons parce que ce point est compatible avec le formalisme de l'intégrale de chemin. La procédure de quantification est précisée comme suit :

1. trouver le Lagrangien L qui, selon les principes du calcul des variations, mène aux équations du mouvement dites d'Euler-Lagrange;
2. trouver les moments conjugués p_i des variables de position q_i selon l'équation $\frac{\partial L}{\partial \dot{q}_i} = p_i$;
3. construire canoniquement l'Hamiltonien à partir des variables conjuguées;
4. effectuer la quantification de cet Hamiltonien en remplaçant les variables dynamiques par des opérateurs linéaires Hermitiens dits observables sujets à des règles de commutation;

5. résoudre notre problème quantique (en déterminant l'opérateur unitaire d'évolution par exemple).

Nous appliquons ce schéma de quantification à différents systèmes comprenant en particulier des charges électriques.

2.1.4 Application à un système de charges électriques

Soit un système de N charges α dont les coordonnées et vitesses généralisées sont $\{q; \dot{q}\}$. Le Lagrangien est une fonction de $\{q; \dot{q}\}$ et du temps t . Définissons l'action entre deux instants :

$$S = \int_{t_1}^{t_2} L(q, \dot{q}, t) dt \quad (2.36)$$

Pour un système conservatif, l'énergie totale est une constante du mouvement et le Lagrangien se formule $L = T - V$ où T et V désignent respectivement les énergies cinétique et potentielle totales. Le long des trajectoires classiques effectivement suivies par les particules du système, l'action présente un extremum, essentiellement un minimum. Le principe $\delta S = 0$ produit les équations d'Euler-Lagrange du mouvement des particules :

$$\frac{d}{dt} \left(\frac{\partial L}{\partial \dot{q}_\alpha} \right) - \frac{\partial L}{\partial q_\alpha} = 0; \alpha = 1, 2, \dots, N \quad (2.37)$$

Ces équations sont légèrement modifiées pour prendre en compte un nombre infini de variables pour le traitement des champs. Au lieu d'exploiter un système de N équations du second ordre (2.37), il est possible de décrire ce même système avec $2N$ équations du premier ordre. Les variables généralisées sont alors $\{q; p\}$ où p notent les moments conjugués généralisés donnés par :

$$p_\alpha = \frac{\partial L}{\partial \dot{q}_\alpha}; \alpha = 1, 2, \dots, N \quad (2.38)$$

Au moyen d'une transformation de Legendre, nous évaluons l'Hamiltonien :

$$H = \left\{ \sum_{\alpha=1}^N p_\alpha \dot{q}_\alpha \right\} - L \quad (2.39)$$

L'Hamiltonien est ainsi exprimé en fonction des coordonnées et moments conjugués généralisés et une dépendance avec le temps peut subsister pour un système non conservatif. Quand l'énergie totale ne dépend pas du temps, l'Hamiltonien est évalué par $T + V$. Après avoir écrit la différentielle totale de H à partir de l'équation (2.39), en exploitant

(2.37) et (2.38), nous obtenons :

$$dH = \sum_{\alpha=1}^N dp_{\alpha} \dot{q}_{\alpha} - \sum_{\alpha=1}^N \dot{p}_{\alpha} dq_{\alpha} - \frac{\partial L}{\partial t} dt \quad (2.40)$$

L'équation précédente produit les équations canoniques de Hamilton-Jacobi :

$$\dot{q}_{\alpha} = \frac{\partial H}{\partial p_{\alpha}} \quad \dot{p}_{\alpha} = -\frac{\partial H}{\partial q_{\alpha}} \quad \frac{\partial H}{\partial t} = -\frac{\partial L}{\partial t} \quad (2.41)$$

Ces équations de Hamilton-Jacobi sont équivalentes au système noté par (2.37).

Notre point de départ réside dans le Lagrangien suivant décrivant un système de particules chargées en mouvement et en interaction de nature coulombienne.

$$L(q, \dot{q}) = \frac{1}{2} \sum_{\alpha} m_{\alpha} \dot{\mathbf{q}}_{\alpha}^2 - \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_{\alpha < \beta} \frac{e_{\alpha} e_{\beta}}{|\mathbf{q}_{\alpha} - \mathbf{q}_{\beta}|} \quad (2.42)$$

Ce Lagrangien convient à notre problème parce qu'il produit les bonnes équations de Newton : $\frac{d\mathbf{p}_{\alpha}}{dt} = -\nabla_{\alpha} V = \mathbf{F}_{\alpha}$. L'équation (2.38) permet d'obtenir le moment conjugué canonique qui se confond ici avec la quantité de mouvement. Finalement nous obtenons l'Hamiltonien :

$$H = \sum_{\alpha} \frac{\mathbf{p}_{\alpha}^2}{2m_{\alpha}} + \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_{\alpha < \beta} \frac{e_{\alpha} e_{\beta}}{|\mathbf{q}_{\alpha} - \mathbf{q}_{\beta}|} \quad (2.43)$$

Nous substituons ensuite aux variables dynamiques classiques les opérateurs Hermitiens correspondants (dits observables). De tels opérateurs obéissent à des relations de commutation canoniques. Nous pouvons résoudre finalement l'équation de Schrödinger associée. Notre méthode est ainsi basée sur une expression initiale du Lagrangien. Nous incluons par la suite un système comprenant une infinité de degrés de liberté : ce système sera un champ de nature électromagnétique.

2.1.5 Quantification du champ électromagnétique en absence de charges

2.1.5.1 Un milieu de taille infinie

L'équation de propagation pour le potentiel vectoriel est donnée en page 14. Les équations de propagation pour les champs microscopiques \mathbf{e} et \mathbf{b} s'écrivent :

$$\Delta \mathbf{e} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{e}}{\partial t^2} = 0 \quad \Delta \mathbf{b} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{b}}{\partial t^2} = 0 \quad (2.44)$$

Les équations (2.44) ont en particulier des solutions du type ondes planes avec :

$$\mathbf{e} = \mathbf{e}_0 \cdot e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} \quad \mathbf{b} = \mathbf{b}_0 \cdot e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} \quad (2.45)$$

où \mathbf{e}_0 et \mathbf{b}_0 sont des facteurs d'amplitude constants pouvant être des grandeurs complexes. Dans le vide, pour ce système de taille infinie, nous avons la relation de dispersion continue :

$$|\mathbf{k}| = k = \frac{\omega}{c} \quad (2.46)$$

\mathbf{k} est le vecteur d'onde dans la direction de propagation et ω note la pulsation. L'équation (MF) autorise la relation :

$$\hat{\mathbf{k}} \wedge \mathbf{e}_0 = c \mathbf{b}_0 \quad (2.47)$$

où $\hat{\mathbf{k}}$ est un vecteur unitaire colinéaire et dirigé selon le vecteur d'onde \mathbf{k} . L'équation (MA) en l'absence de sources permet l'écriture :

$$\hat{\mathbf{k}} \wedge \mathbf{b}_0 = -\frac{1}{c} \mathbf{e}_0 \quad (2.48)$$

Par conséquent, les vecteurs $\hat{\mathbf{k}}$, \mathbf{e}_0 et \mathbf{b}_0 forment un trièdre orthonormé orienté.

Le vecteur potentiel admet aussi une solution en ondes planes :

$$\mathbf{a} = \mathbf{a}_0 \cdot e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)} \quad (2.49)$$

L'équation (2.35) montre que \mathbf{e} et \mathbf{a} sont colinéaires avec $\mathbf{e}_0 = ick \mathbf{a}_0$.

2.1.5.2 Description du champ électromagnétique dans une boîte cubique finie

Le champ électromagnétique est considéré dans une boîte cubique dont les côtés ont pour longueur l . La condition aux limites périodiques sur les faces de la boîte restreint les valeurs prises par le vecteur d'onde \mathbf{k} . Dans [2] et [3], les valeurs suivantes sont données :

$$k_x = n_x \left(\frac{2\pi}{l} \right) \quad k_y = n_y \left(\frac{2\pi}{l} \right) \quad k_z = n_z \left(\frac{2\pi}{l} \right) \quad (2.50)$$

où n_x , n_y et n_z sont des entiers relatifs. Le vecteur potentiel \mathbf{a} est développé selon les modes libellés par le couple $\{\mathbf{k}, \lambda\}$ tel que les vecteurs d'onde prennent les valeurs comme indiquées par (2.50). λ note les deux polarisations transverses de \mathbf{e} et \mathbf{a} par rapport aux

vecteurs d'onde. Le vecteur potentiel $\mathbf{a}(\mathbf{r}, t)$ est représenté selon une série de Fourier :

$$\mathbf{a}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{k}\lambda} \left\{ \mathbf{e}^{(\lambda)}(\mathbf{k}) \cdot \mathbf{a}_{\mathbf{k}}^{(\lambda)}(t) \cdot e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + \bar{\mathbf{e}}^{(\lambda)}(\mathbf{k}) \cdot \bar{\mathbf{a}}_{\mathbf{k}}^{(\lambda)}(t) \cdot e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \right\} \quad (2.51)$$

$\mathbf{e}^{(\lambda)}(\mathbf{k})$ est un vecteur de polarisation transverse. $\mathbf{a}_{\mathbf{k}}^{(\lambda)}(t)$ désigne la dépendance par rapport au temps du mode $\{\mathbf{k}, \lambda\}$. Cette grandeur est proportionnelle à $e^{-i\omega t}$. La barre surmontant les différentes quantités indique les valeurs conjuguées complexes. Les vecteurs du champ électromagnétique se formulent donc selon ces mêmes séries de Fourier :

$$\begin{aligned} \mathbf{e}(\mathbf{r}, t) &= -\frac{\partial \mathbf{a}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} = ic \sum_{\mathbf{k}\lambda} k \left\{ \mathbf{e}^{(\lambda)}(\mathbf{k}) \cdot \mathbf{a}_{\mathbf{k}}^{(\lambda)}(t) \cdot e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} - \bar{\mathbf{e}}^{(\lambda)}(\mathbf{k}) \cdot \bar{\mathbf{a}}_{\mathbf{k}}^{(\lambda)}(t) \cdot e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \right\} \\ \mathbf{b}(\mathbf{r}, t) &= \nabla \wedge \mathbf{a}(\mathbf{r}, t) = i \sum_{\mathbf{k}\lambda} k \left\{ \left(\hat{k} \wedge \mathbf{e}^{(\lambda)}(\mathbf{k}) \right) \cdot \mathbf{a}_{\mathbf{k}}^{(\lambda)}(t) \cdot e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} - \left(\hat{k} \wedge \bar{\mathbf{e}}^{(\lambda)}(\mathbf{k}) \right) \cdot \bar{\mathbf{a}}_{\mathbf{k}}^{(\lambda)}(t) \cdot e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \right\} \end{aligned} \quad (2.52)$$

Des facteurs de normalisation seront affectés ultérieurement aux équations (2.51) et (2.52).

2.1.5.3 Lagrangien et Hamiltonien du champ électromagnétique dans le vide

Parce que le champ varie continument dans l'espace (nous avons une infinité indénombrable de degrés de liberté), une densité lagrangienne \mathcal{L} est introduite. Le Lagrangien total est fourni par :

$$L = \int \mathcal{L} d^3r \quad (2.53)$$

La coordonnée généralisée, utilisée pour quantifier le champ électromagnétique, est le vecteur potentiel. Il en résulte que la densité lagrangienne dépend de \mathbf{a} et de $\dot{\mathbf{a}}$. En outre, puisque \mathbf{a} est une fonction de la position, cette densité est également dépendante des dérivées spatiales du vecteur potentiel. Nous posons : $\mathcal{L}(\mathbf{a}, \nabla \mathbf{a}, \dot{\mathbf{a}})$.

L'action doit être minimale :

$$\delta S = \delta \int_{t_1}^{t_2} \int \mathcal{L}(\mathbf{a}, \nabla \mathbf{a}, \dot{\mathbf{a}}) d^3r dt = 0 \quad (2.54)$$

Nous considérons un changement de $\mathbf{a}(\mathbf{r}, t)$ vers $\mathbf{a}(\mathbf{r}, t) + \delta \mathbf{a}(\mathbf{r}, t)$ et δS est évaluée :

$$\int_{t_1}^{t_2} \int \left\{ \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial a_i} \delta a_i + \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \left(\frac{\partial a_i}{\partial x_j} \right)} \frac{\partial}{\partial x_j} (\delta a_i) + \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{a}_i} \frac{\partial}{\partial t} (\delta a_i) \right\} d^3r dt = 0 \quad (2.55)$$

Dans l'équation précédente, la convention de sommation sur les indices muets répétés

est appliquée. Le second terme est intégré par parties en respectant la condition aux bords $\delta \mathbf{a} \rightarrow 0$ quand $r \rightarrow +\infty$:

$$\int \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \left(\frac{\partial a_i}{\partial x_j} \right)} \frac{\partial}{\partial x_j} (\delta a_i) d^3 r = - \int \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \left(\frac{\partial a_i}{\partial x_j} \right)} \right) \delta a_i d^3 r \quad (2.56)$$

Le troisième terme de (2.55) est intégré par parties relativement au temps. Les points initial et final restent inchangés $\delta a_i(t_1) = \delta a_i(t_2) = 0$:

$$\int_{t_1}^{t_2} \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{a}_i} \frac{\partial}{\partial t} (\delta a_i) dt = - \int_{t_1}^{t_2} \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{a}_i} \right) \delta a_i dt \quad (2.57)$$

Finalement, les équations d'Euler-Lagrange du mouvement sont obtenues :

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{a}_i} \right) + \frac{\partial}{\partial x_j} \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \left(\frac{\partial a_i}{\partial x_j} \right)} \right) - \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial a_i} = 0 \quad (2.58)$$

Cette équation est à comparer avec (2.37) qui en diffère par l'absence du second terme $\frac{\partial}{\partial x_j} \left(\frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \left(\frac{\partial a_i}{\partial x_j} \right)} \right)$. Ce terme apparaît en raison de la dépendance selon la position du vecteur potentiel $\mathbf{a}(\mathbf{r}, t)$. La densité lagrangienne donnée ci-dessous satisfait les équations de Maxwell (2.25) lorsqu'elle est placée dans (2.58) :

$$\mathcal{L} = \frac{\epsilon_0}{2} \{ \dot{\mathbf{a}}^2 - c^2 (\nabla \wedge \mathbf{a})^2 \} \quad (2.59)$$

Le moment canonique conjugué du vecteur potentiel s'évalue :

$$\mathbf{\Pi}(\mathbf{r}) = \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{a}}} \quad (2.60)$$

Dans le cas présent, $\mathbf{\Pi} = \epsilon_0 \dot{\mathbf{a}}$. La densité hamiltonienne est ainsi fournie par :

$$\mathcal{H} = \mathbf{\Pi} \cdot \dot{\mathbf{a}} - \mathcal{L} \quad (2.61)$$

Cette densité hamiltonienne du champ électromagnétique dans le vide se calcule comme :

$$\mathcal{H} = \frac{1}{2} \left\{ \frac{\mathbf{\Pi}^2}{\epsilon_0} + \epsilon_0 c^2 (\nabla \wedge \mathbf{a})^2 \right\} \quad (2.62)$$

En termes de champs microscopiques, nous obtenons : $\mathcal{H} = \frac{\epsilon_0}{2} \{ \mathbf{e}^2 + c^2 \mathbf{b}^2 \}$. L'Hamiltonien total s'écrit $H = \int \mathcal{H} d^3r$.

Comme évalué dans [4], H se décompose comme une somme d'oscillateurs harmoniques. Un oscillateur est ainsi associé à chaque mode $\{\mathbf{k}, \lambda\}$ et nous posons :

$$H = \sum_{\mathbf{k}\lambda} \frac{1}{2} \left\{ (p_{\mathbf{k}}^{(\lambda)})^2 + \omega(\mathbf{k}, \lambda)^2 (q_{\mathbf{k}}^{(\lambda)})^2 \right\} \quad (2.63)$$

$p_{\mathbf{k}}^{(\lambda)}$ et $q_{\mathbf{k}}^{(\lambda)}$ s'expriment en fonction de grandeurs associées au potentiel vecteur. Elles servent à quantifier l'Hamiltonien. V_e note le volume de la boîte :

$$q_{\mathbf{k}}^{(\lambda)} = (V_e \epsilon_0)^{\frac{1}{2}} \left(a_{\mathbf{k}}^{(\lambda)} + \bar{a}_{\mathbf{k}}^{(\lambda)} \right) \quad p_{\mathbf{k}}^{(\lambda)} = -i c k (V_e \epsilon_0)^{\frac{1}{2}} \left(a_{\mathbf{k}}^{(\lambda)} - \bar{a}_{\mathbf{k}}^{(\lambda)} \right) \quad (2.64)$$

Cette quantification du champ électromagnétique dans le vide à partir de celle de l'oscillateur harmonique est réalisée dans les nombreux ouvrages de mécanique quantique (voir [5], [6] et aussi [7]). Nous renvoyons à leur consultation. Nous substituons à $a_{\mathbf{k}}^{(\lambda)}$ et $\bar{a}_{\mathbf{k}}^{(\lambda)}$ des opérateurs d'annihilation et de création du mode correspondant et réécrivons \mathbf{a} , \mathbf{e} et \mathbf{b} en tant qu'opérateurs Hermitiens dépendant de tels opérateurs d'annihilation et de création. Les équations (2.51) et (2.52) sont adaptées après avoir noté les bons facteurs de normalisation :

$$\begin{aligned} \mathbf{a}(\mathbf{r}) &= \sum_{\mathbf{k}\lambda} \left(\frac{\hbar}{2\epsilon_0 c k V_e} \right)^{\frac{1}{2}} \left\{ \mathbf{e}^{(\lambda)}(\mathbf{k}) a^{(\lambda)}(\mathbf{k}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} + \bar{\mathbf{e}}^{(\lambda)}(\mathbf{k}) a^{\dagger(\lambda)}(\mathbf{k}) e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \right\} \\ \mathbf{e}(\mathbf{r}) &= i \sum_{\mathbf{k}\lambda} \left(\frac{\hbar c k}{2\epsilon_0 V_e} \right)^{\frac{1}{2}} \left\{ \mathbf{e}^{(\lambda)}(\mathbf{k}) a^{(\lambda)}(\mathbf{k}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} - \bar{\mathbf{e}}^{(\lambda)}(\mathbf{k}) a^{\dagger(\lambda)}(\mathbf{k}) e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \right\} \\ \mathbf{b}(\mathbf{r}) &= i \sum_{\mathbf{k}\lambda} \left(\frac{\hbar k}{2\epsilon_0 V_e c} \right)^{\frac{1}{2}} \left\{ \mathbf{b}^{(\lambda)}(\mathbf{k}) a^{(\lambda)}(\mathbf{k}) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} - \bar{\mathbf{b}}^{(\lambda)}(\mathbf{k}) a^{\dagger(\lambda)}(\mathbf{k}) e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}} \right\} \end{aligned} \quad (2.65)$$

où $\mathbf{b}^{(\lambda)}(\mathbf{k}) = \hat{\mathbf{k}} \wedge \mathbf{e}^{(\lambda)}(\mathbf{k})$. Le problème de la quantification du champ électromagnétique (EM) en l'absence de charges a été résolu. Nous incluons des particules chargées dans notre système initialement constitué du seul champ EM.

2.1.6 Particules chargées dans un champ électromagnétique

Le Lagrangien total est donné par :

$$L = L_{part} + L_{rad} + L_{int} \quad (2.66)$$

L_{part} est fourni par une équation équivalente à (2.42) : $L_{part} = \frac{1}{2} \sum_{\alpha} m_{\alpha} \dot{\mathbf{q}}_{\alpha}^2 - V(\mathbf{q}_1, \mathbf{q}_2, \dots)$. $L_{rad} = \frac{\epsilon_0}{2} \int \{ \dot{\mathbf{a}}^2 - c^2 (\nabla \wedge \mathbf{a})^2 \} d^3 r$ comme donné par (2.59). La nouveauté par rapport aux précédentes formules est l'introduction d'un Lagrangien d'interaction couplant les particules au champ électromagnétique :

$$L_{int} = \int \mathbf{j}^{\perp}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{a}(\mathbf{r}) d^3 r \quad (2.67)$$

Les composantes de la densité de courant transverse sont comme suit :

$$j_i^{\perp}(\mathbf{r}) = \sum_{\alpha} e_{\alpha} \dot{q}_{j(\alpha)} \delta_{ij}^{\perp}(\mathbf{r} - \mathbf{q}_{\alpha}) \quad (2.68)$$

δ_{ij}^{\perp} est une fonction δ -dyadique. Sa définition s'exprime par :

$$\delta_{ij}^{\perp}(\mathbf{r}) = \frac{2}{3} \delta_{ij} \delta(\mathbf{r}) - \frac{1}{4\pi r^3} (\delta_{ij} - 3\hat{r}_i \hat{r}_j) \quad (2.69)$$

\hat{r}_i et \hat{r}_j sont des vecteurs unitaires selon les axes cartésiens.

Les équations de Newton comme indiquées en [8] sont alors :

$$m_{\alpha} \ddot{q}_{i(\alpha)} = - \frac{\partial V}{\partial q_{i(\alpha)}} + e_{\alpha} e_i^{\perp}(\mathbf{q}_{\alpha}) + e_{\alpha} [\dot{\mathbf{q}}_{\alpha} \wedge \mathbf{b}(\mathbf{q}_{\alpha})]_i \quad (2.70)$$

Le terme de force est la somme d'une force dérivant d'une énergie potentielle à laquelle est ajoutée la force de Lorentz due au champ électromagnétique. L'équation du mouvement s'interprète comme une équation de propagation pour le vecteur potentiel en présence d'un terme de source du à la densité de courant transverse. Nous écrivons ainsi :

$$\left(\Delta - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \mathbf{a}(\mathbf{r}) = - \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \mathbf{j}^{\perp}(\mathbf{r}) \quad (2.71)$$

Le Lagrangien donné par (2.66) est l'un de ceux correspondant à notre problème. Nous pouvons alors appliquer le schéma de quantification. Les moments conjugués des parti-

cules s'évaluent :

$$\mathbf{p}_\alpha = \frac{\partial L}{\partial \dot{\mathbf{q}}_\alpha} = m_\alpha \dot{\mathbf{q}}_\alpha + e_\alpha \mathbf{a}(\mathbf{q}_\alpha) \quad (2.72)$$

Ce moment conjugué des particules ne se confond plus avec leur quantité de mouvement. Le moment conjugué pour le champ électromagnétique a la même expression que celle dans le cas du champ vide de charges :

$$\mathbf{\Pi}(\mathbf{r}) = \frac{\partial \mathcal{L}}{\partial \dot{\mathbf{a}}} = \epsilon_0 \dot{\mathbf{a}}(\mathbf{r}) = -\epsilon_0 \mathbf{e}^\perp(\mathbf{r}) \quad (2.73)$$

La transformation de Legendre se formule comme suit :

$$H = \sum_\alpha \mathbf{p}_\alpha \dot{\mathbf{q}}_\alpha + \int \mathbf{\Pi} \cdot \dot{\mathbf{a}} d^3r - L \quad (2.74)$$

En remplaçant $\dot{\mathbf{q}}$ et $\dot{\mathbf{a}}$ par leurs expressions (2.72) et (2.73) et en incorporant ces dernières dans la formule (2.74), après simplification, nous obtenons l'Hamiltonien du système de particules chargées couplées à un champ électromagnétique :

$$H = \sum_\alpha \frac{1}{2m_\alpha} \{ \mathbf{p}_\alpha - e_\alpha \mathbf{a}(\mathbf{q}_\alpha) \}^2 + V(\mathbf{q}) + \frac{1}{2} \int \left\{ \frac{\mathbf{\Pi}^2}{\epsilon_0} + \epsilon_0 c^2 (\nabla \wedge \mathbf{a})^2 \right\} d^3r \quad (2.75)$$

Le couplage entre les particules chargées et le champ de radiation correspond à la substitution :

$$\boxed{\mathbf{p}_\alpha \rightarrow \mathbf{p}_\alpha - e_\alpha \mathbf{a}(\mathbf{q}_\alpha)} \quad (2.76)$$

Pour un Hamiltonien semi-classique, nous avons une formule semblable à (2.75) avec l'absence du terme de radiation $\frac{1}{2} \int \left\{ \frac{\mathbf{\Pi}^2}{\epsilon_0} + \epsilon_0 c^2 (\nabla \wedge \mathbf{a})^2 \right\} d\mathbf{r}$.

Cette substitution se nomme Couplage Électromagnétique Minimal. Nous achevons ici ce paragraphe. Il resterait à quantifier le système en associant à l'Hamiltonien (2.75) l'opérateur Hermitien correspondant et à résoudre par exemple l'équation de Schrödinger associée. Ce couplage est fondamental parce qu'il introduit dans l'Hamiltonien le vecteur potentiel et c'est ce dernier qui, étant approché convenablement, autorise le traitement au moyen d'un Hamiltonien perturbé de nature dipolaire électrique. Nous avons pu poser le Lagrangien de divers systèmes. Cette formulation peut être exploitée par des intégrales de chemin (ou formulation en intégrales fonctionnelles) qui ne seront qu'évoquées au chapitre (4). Nous présentons la méthode de la résolvante permettant de prendre en compte les dégénérescences des états associés aux symétries pour le calcul de la spectroscopie quantitative de ceux-ci.

2.2 La méthode de la résolvante

La méthode de la résolvante autorise l'évaluation du temps d'émission spontanée pour un niveau choisi tout en prenant en compte les dégénérescences de l'ensemble des niveaux électroniques d'énergie. Elle sera exploitée au chapitre (3) pour calculer les temps d'émission spontanée du niveau e_g du saphir dopé au titane lors de transitions dipolaires magnétique et électrique résiduelle. Dans le présent traitement dans cette section, les formules sont néanmoins posées pour un état propre supposé non-dégénéré. Au chapitre (3), la formule du temps d'émission spontanée pour un système gouverné par un moment dipolaire magnétique sera démontrée. La formule du cas du système gouverné par un moment dipolaire électrique sera extraite de la littérature sans démonstration.

2.2.1 Définition de la résolvante

Considérons un Hamiltonien indépendant du temps. Nous appelons résolvante de l'Hamiltonien H la famille à un paramètre formée des opérateurs :

$$G(z) \equiv (z \cdot 1 - H)^{-1}, \quad z \notin \text{Spec}(H) \quad (2.77)$$

Nous posons une équation de Schrödinger inhomogène :

$$(i\hbar d_t - H)\Omega_{\pm}(t - t') = i\hbar\delta(t - t') \cdot 1 \quad (2.78)$$

Cette fonction du temps Ω est nommée fonction de Green retardée ou avancée de l'équation de Schrödinger et a pour expression :

$$\Omega_{\pm}(\tau) \equiv \frac{i}{2\pi} \lim_{\epsilon \rightarrow +0} \int_{-\infty \pm i\epsilon}^{+\infty \pm i\epsilon} dz G(z) e^{\frac{-iz\tau}{\hbar}} \quad (2.79)$$

A l'aide du théorème des résidus, nous dérivons :

$$\Omega_{\pm}(\tau) = \pm\theta(\pm\tau) \exp\left(-iH\frac{\tau}{\hbar}\right) \quad (2.80)$$

où θ désigne la fonction de Heaviside.

Ces fonctions de Green sont reliées à l'opérateur unitaire d'évolution $U(t', t)$ lorsque $t > t'$ et $t < t'$:

$$U(t', t) = \begin{cases} \Omega_+(t - t') & \text{si } t > t' \\ -\Omega_-(t - t') & \text{si } t < t' \end{cases} \quad (2.81)$$

2.2.2 Approche non perturbative de la durée de vie des états excités

Nous considérons comme de coutume un Hamiltonien perturbé de la forme :

$$H = H_0 + H_{int} \quad (2.82)$$

Nous raisonnons sur un état stationnaire de H_0 décrit par le ket propre $|v_0\rangle$:

$$H_0|v_0\rangle = E_{v_0}|v_0\rangle \quad (2.83)$$

associé ici à la valeur propre E_{v_0} prise non dégénérée, mais il faut bien spécifier que l'intérêt de la méthode de la résolvante est de permettre la généralisation au cas où cette valeur propre présente une réelle dégénérescence. Cette généralisation sera exploitée dans le chapitre (3) du présent exposé. Nous cherchons à calculer l'élément de matrice $\langle v_0|U(0, t)|v_0\rangle$ pour $t > 0$. La tâche se réduit à la détermination de l'élément de matrice correspondant de la résolvante $G(z)$ parce que :

$$\langle v_0|U(0, t)|v_0\rangle = \frac{i}{2\pi} \lim_{\epsilon \rightarrow +0} \int_{-\infty \pm i\epsilon}^{+\infty \pm i\epsilon} dz \langle v_0|G(z)|v_0\rangle e^{\frac{-izt}{\hbar}} \quad (2.84)$$

L'évaluation de l'élément de matrice $\langle v_0|G(z)|v_0\rangle$ permet d'introduire des opérateurs tels que P et R définis ci-dessous. Ainsi, pour tout projecteur P qui commute avec H_0 :

$$PG(z)P = \frac{P}{z \cdot 1 - P(H_0 + R(z))P} \quad (2.85)$$

où l'opérateur fondamental $R(z)$ se formule :

$$R(z) = H_{int} + H_{int} \frac{Q}{z \cdot 1 - QHQ} H_{int} \quad (2.86)$$

et $Q = 1 - P$. Si nous posons en particulier $P = |v_0\rangle\langle v_0|$, l'élément de matrice de la résolvante s'écrit alors :

$$\langle v_0|G(z)|v_0\rangle = \langle v_0|PG(z)P|v_0\rangle = \frac{1}{z - E_{v_0} - R_{v_0}(z)} \quad (2.87)$$

où $R_{v_0}(z) = \langle v_0|R(z)|v_0\rangle$.

L'équation (2.84) devient :

$$\langle v_0 | U(0, t) | v_0 \rangle = \frac{i}{2\pi} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \int_{-\infty + i\epsilon}^{+\infty + i\epsilon} dz \frac{e^{-izt/\hbar}}{z - E_{v_0} - R_{v_0}(z)} \quad (2.88)$$

L'évaluation de l'élément de matrice $\langle v_0 | U(0, t) | v_0 \rangle$ est rendue possible lorsque nous connaissons celle de l'élément $\langle v_0 | R(z) | v_0 \rangle$. $R(z)$ désigne l'opérateur de déplacement spectral. Cet opérateur dispose d'un développement exprimé à partir de Q :

$$R(z) = H_{int} + H_{int} \frac{Q}{z \cdot 1 - H_0} H_{int} + H_{int} \frac{Q}{z \cdot 1 - H_0} H_{int} \frac{Q}{z \cdot 1 - H_0} H_{int} + \dots \quad (2.89)$$

Nous ne retenons que les deux premiers termes du précédent développement, soit l'expression :

$$R(z) \cong H_{int} + H_{int} \frac{Q}{z \cdot 1 - H_0} H_{int} \quad (2.90)$$

Une telle approximation n'est pas équivalente à une approche perturbative de la résolvante. Nous renvoyons à [9] pour la démonstration des résultats :

$$\Delta E_{v_0} = \text{Re}\{R_{v_0}(E_{v_0} + i 0)\} \quad (2.91)$$

$$\Gamma_{v_0} = 2 |\text{Im}\{R_{v_0}(E_{v_0} + i 0)\}| \quad (2.92)$$

L'élément de matrice de l'opérateur unitaire d'évolution se formule donc au moyen de l'expression :

$$\langle v_0 | U(0, t) | v_0 \rangle = e^{-i(E_{v_0} + \Delta E_{v_0}) \frac{t}{\hbar}} \cdot e^{-\frac{\Gamma_{v_0} t}{2\hbar}} \quad (2.93)$$

L'état excité $|v_0\rangle$ est instable et il présente une durée de vie :

$$\tau_{v_0} = \frac{\hbar}{\Gamma_{v_0}} \quad (2.94)$$

Le calcul de l'élément de matrice de l'opérateur de déplacement spectral $R(z)$, que nous notons $R_{v_0}(E_{v_0} + i 0)$, nous renseigne sur une estimation du temps de vie du niveau excité (nous prenons alors la partie imaginaire idoine : équations (2.92) et (2.94)). Le grand intérêt de ce formalisme est qu'il a été généralisé à des états excités associés à des niveaux d'énergie dégénérés. Il sera exploité au chapitre (3) pour le calcul du temps de vie du niveau e_g deux fois dégénéré. Nous introduisons l'opérateur matrice densité qui aide à formuler les équations d'évolution des cohérences et des populations formées à partir

des coefficients de la fonction d'onde décrivant l'état général de notre système.

2.3 Opérateur matrice densité

Ce formalisme est primordial. Il relie les éléments de l'opérateur matrice densité à des produits quadratiques des coefficients de la fonction d'onde développée sur une base de vecteurs propres (de l'Hamiltonien) stationnaires. Les équations d'évolution des éléments de cette matrice densité sont dérivées à partir de l'équation fondamentale de Schrödinger. Elles font intervenir le commutateur de l'Hamiltonien et de l'opérateur matrice densité.

2.3.1 Définition de cet opérateur

Nous suivons la définition donnée par [10]. Nous supposons un système dont l'état quantique est pur et exprimé par une combinaison linéaire des états stationnaires $|a\rangle$ et $|b\rangle$:

$$|\psi(t)\rangle = C_a(t)|a\rangle + C_b(t)|b\rangle \quad (2.95)$$

L'opérateur matrice densité pour cet état pur se formule comme suit :

$$\begin{aligned} \rho(t) &= |\psi(t)\rangle\langle\psi(t)| \\ &= |C_a(t)|^2|a\rangle\langle a| + C_a(t)C_b^*(t)|a\rangle\langle b| + C_a^*(t)C_b(t)|b\rangle\langle a| + |C_b(t)|^2|b\rangle\langle b| \end{aligned} \quad (2.96)$$

En sélectionnant les éléments de matrice pour l'opérateur $\rho(t)$, nous pouvons poser :

$$\begin{aligned} \rho_{aa} &= \langle a|\rho|a\rangle = |C_a(t)|^2 \\ \rho_{ab} &= \langle a|\rho|b\rangle = C_a(t)C_b^*(t) \\ \rho_{ba} &= \rho_{ab}^* \\ \rho_{bb} &= \langle b|\rho|b\rangle = |C_b(t)|^2 \end{aligned} \quad (2.97)$$

La forme matricielle de l'opérateur densité se lit :

$$\begin{pmatrix} \rho_{aa} & \rho_{ab} \\ \rho_{ba} & \rho_{bb} \end{pmatrix} \quad (2.98)$$

C'est une matrice Hermitienne dont la trace a pour valeur 1.

Lorsque l'état quantique n'est pas pur, l'expression de l'opérateur matrice densité devient

par contre :

$$\rho = \sum_{\Psi} P_{\Psi} |\Psi\rangle \langle \Psi| \quad (2.99)$$

P_{Ψ} désigne la probabilité d'avoir l'état $|\Psi\rangle$ dans le mélange des états. L'opérateur densité pour cette généralisation demeure une matrice Hermitienne dont la trace a toujours pour valeur 1.

Nous résumons ce formalisme : les éléments de matrice diagonaux de l'opérateur matrice densité sont associés à des populations ou présences d'électrons sur des niveaux d'énergie. Les éléments non-diagonaux sont à associer aux cohérences du système physique (c'est-à-dire les produits $C_a(t)C_b^*(t)$ par exemple).

2.3.2 Équation d'évolution pour la matrice densité

L'équation d'évolution de l'opérateur matrice densité, pour sa partie cohérente, est issue de l'équation de Schrödinger. Elle se lit :

$$\dot{\rho}(t) = -\frac{i}{\hbar} [H, \rho] \quad (2.100)$$

L'expression entre crochet correspond à un commutateur d'opérateurs : $[H, \rho] = H\rho - \rho H$. Nous complétons cette équation d'évolution par des termes additionnels de pompes et de relaxations. Nous obtenons finalement un système d'équations dit de Bloch. Nous allons évoquer le principe de Franck-Condon qui détermine les transitions radiatives les plus probables d'un système moléculaire ou cristallin.

2.4 Principe de Franck-Condon

Le principe de Franck-Condon est exploité en physique moléculaire et pour celle traitant des cristaux. Nous commentons la figure (2.1). Sur celle-ci, les courbes E_0 et E_1 approchant des paraboles sont attachées à des niveaux électroniques. Les transitions électroniques sont très rapides comparées aux mouvements lents des noyaux : l'approximation de Born-Oppenheimer est alors exploitée. Nous découplons donc le mouvement des électrons de ceux des noyaux et étudions les mouvements de tels électrons en traitant les distances internucléaires comme des paramètres fixes. Ce point de vue permet de tracer ces deux courbes. Nous avons représenté pour ces dernières les fonctions d'onde du type oscillateur harmonique prédisant les mouvements des noyaux. Ainsi, pour chaque niveau électronique (courbes E_0 ou E_1), nous avons un ensemble de telles fonctions d'onde.

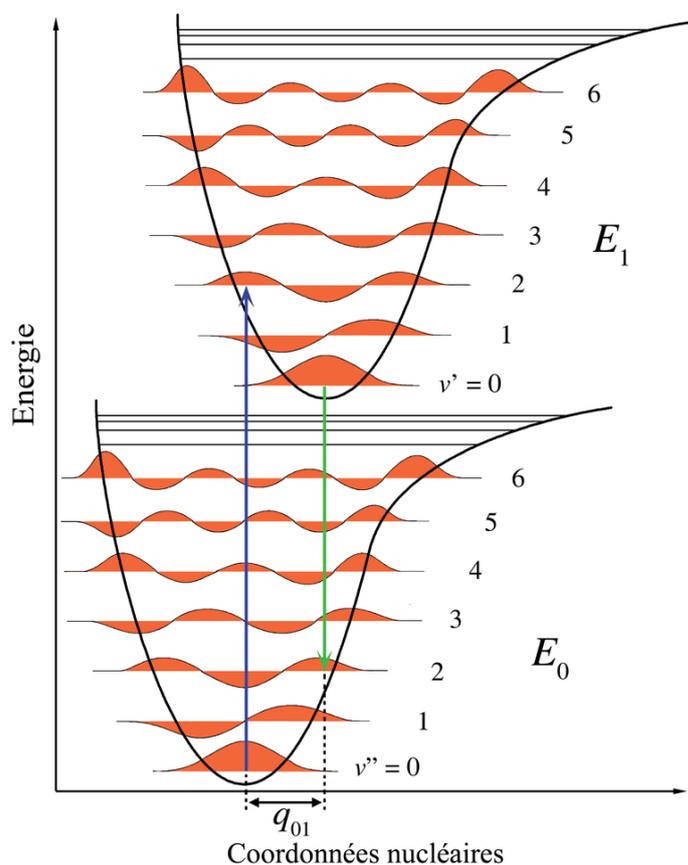


FIGURE 2.1 – Diagramme d'énergies illustrant le principe de Franck-Condon.

Le principe de Franck-Condon prédit que les transitions radiatives les plus probables pour ce système moléculaire (en émission ou en absorption par exemple) sont celles correspondant à un déplacement nucléaire nul. Sur la figure (2.1), ces transitions sont notées par des flèches totalement verticales. La flèche bleue correspond à un photon absorbé le plus probable. Quant à la flèche verte, elle indique un photon émis aussi le plus probable. Entre ces deux photons, nous constatons une différence d'énergies et un déplacement nucléaire q_{01} pour un diagramme à une seule variable nucléaire. Cette différence et ce déplacement représentent un décalage de Stokes. La figure ici commentée correspond à un système vibronique décrivant idéalement les énergies d'un laser Ti :saphir dit à quatre niveaux pour une symétrie octaédrique. Le niveau excité est associé au doublet e_g et le niveau fondamental correspond au triplet t_{2g} . Au chapitre (4), cette configuration sera envisagée afin d'évaluer l'indice de réfraction total du Ti :saphir en fonction de la concentration de dopant titane. Nous avons évoqué la symétrie octaédrique. Nous montrons une autre symétrie plus "basse".

2.5 Symétries cristallines

Nous présentons deux symétries du champ cristallin influençant l'ion titane central. La symétrie octaédrique constitue une bonne approximation pour la détermination des premières propriétés de spectroscopie quantitative du Ti :saphir. La symétrie, en toute rigueur, de ce matériau est trigonale avec une configuration à trois niveaux électroniques d'énergie. Dans notre exposé au chapitre (6), nous chercherons à mettre en œuvre des phénomènes pour une telle configuration.

2.5.1 La symétrie octaédrique

L'ion titane libre, qui présente initialement la symétrie sphérique, lorsqu'il est placé dans le champ cristallin du corindon, adopte la symétrie dite octaédrique (notée O_h) qui lève partiellement sa dégénérescence. L'électron de valence $3d^1$ initialement 5 fois dégénéré (si nous ne tenons pas compte de son spin) possède alors deux états : t_{2g} , le fondamental trois fois dégénéré et e_g deux fois dégénéré. Pour cette symétrie, toutes les distances sur la figure (2.2) entre l'ion titane au centre et un ion oxygène (première sphère de coordination) sont identiques.

2.5.2 La symétrie trigonale

En réalité la symétrie octaédrique est seulement approchée. La symétrie est à nouveau abaissée et celle effectivement réalisée est qualifiée de trigonale. Ainsi sur la figure (2.2), les distances (0,2), (0,4) et (0,6) restent égales entre elles et ont pour valeur 1.969 Å. Par contre les distances (0,1), (0,3) et (0,5) sont égales entre elles, mais présentent une valeur légèrement différente de celle donnée précédemment. Les résultats de cette différence sont par exemple :

1. la poursuite de la levée de dégénérescence (le niveau t_{2g} est subdivisé en deux sous-niveaux, un singulet et un doublet) ;
2. la relaxation de la règle de Laporte ;
3. une contribution à un moment dipolaire électrique résiduel ;
4. une configuration réelle à trois niveaux électroniques d'énergie pouvant donner lieu à une nouvelle spectroscopie.

La symétrie trigonale, notée C_{3v} , permet l'exploitation d'une configuration à trois niveaux d'énergie (un niveau haut et deux sous-niveaux proches entre eux d'énergies plus

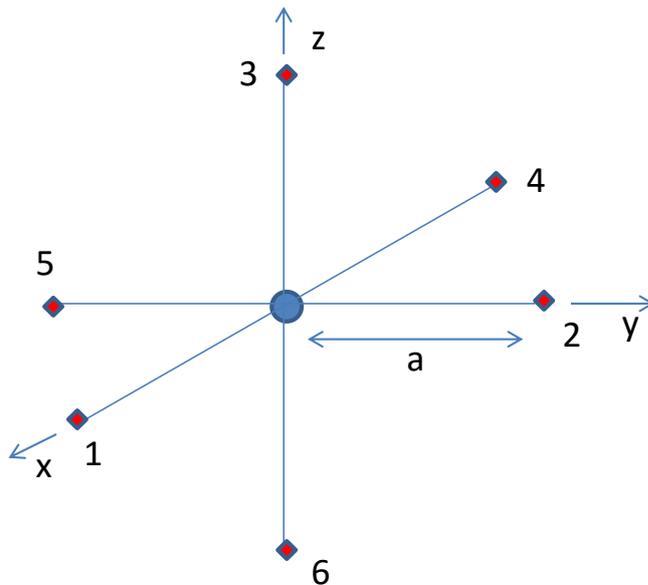


FIGURE 2.2 – Ion titane dans le corindon : une symétrie octaédrique approchée. L'ion central est le titane entouré de six ions oxygène.

basses) pour l'ion titane dans le corindon. Une telle configuration autoriserait, théoriquement, un effet laser sans inversion de populations. Cet effet est investigué au chapitre (6).

Conclusion

Nous venons d'introduire les outils théoriques et principes nécessaires dans les chapitres suivants à nos développements.

La prescription du couplage électromagnétique minimal a été démontrée : elle consiste en la substitution : $\mathbf{p}_\alpha \rightarrow \mathbf{p}_\alpha - e_\alpha \mathbf{a}(\mathbf{q}_\alpha)$. Nous avons calculé différents Lagrangiens correspondant à divers systèmes physiques. Nous serons en mesure d'établir les Hamiltoniens décrivant nos systèmes et permettant leur quantification.

Nous avons présenté la méthode de la résolvante qui permet un traitement rigoureux dans l'évaluation d'éléments de matrice (ceux de l'opérateur unitaire d'évolution) associés à des états dégénérés. L'une des contributions de la présente thèse est ainsi la prise en compte de telles dégénérescences. L'opérateur de déplacement spectral, qui est issu de cette méthode, autorisera le calcul de la durée de vie d'états excités parmi l'une de ses applications.

Nous avons terminé par un bref rappel du formalisme de l'opérateur matrice densité parce que cet opérateur intervient au moyen de ses éléments de matrice dans la mise en équations de l'évolution des systèmes quantiques. Ainsi, la détermination de l'indice de réfraction total du Ti :saphir en fonction de sa concentration de dopant, des conditions de

seuil d'effet laser pour les configurations à deux et trois niveaux électroniques d'énergie et l'établissement des équations des lasers à état solide appliquent ce formalisme.

Nous mentionnons finalement les deux symétries cristallines responsables des deux configurations électroniques évoquées ci-dessus.

Nous mettons donc en œuvre ces différents outils théoriques et principes dans la compréhension analytique et simple des propriétés spectroscopiques et photo-physiques du saphir dopé à l'ion titane Ti^{3+} . Une telle approche autorisera de futures études paramétriques de ces propriétés.

Glossaire pour le chapitre (2)

$a^{(\lambda)}(\mathbf{k})$ Opérateur d'annihilation du mode du champ électromagnétique $\{\mathbf{k}, \lambda\}$

$a^{\dagger(\lambda)}(\mathbf{k})$ Opérateur de création du mode du champ électromagnétique $\{\mathbf{k}, \lambda\}$

\mathbf{b} Vecteur magnétique microscopique

b_0 Facteur d'amplitude du champ magnétique microscopique

c Célérité de la lumière

$C_a(t)$ Amplitude de probabilité du ket stationnaire $|a\rangle$

C_{3v} Notation de la symétrie trigonale

\mathbf{e} Champ électrique microscopique

e_0 Facteur d'amplitude du champ électrique microscopique

e_α Charge électrique de la particule α

$\mathbf{e}^{(\lambda)}(\mathbf{k})$ Vecteur de polarisation transverse pour le mode $\{\mathbf{k}, \lambda\}$

e_g Niveau électronique excité du Ti :saphir

$G(z)$ Opérateur à un paramètre z de la résolvante

\hbar Constante de Planck réduite

\mathbf{j} Densité de courants

$\mathbf{j}_{\text{libre}}$ Densité de courants libres

l Côté d'une boîte cubique

m_α Masse de la particule α

p_i Moment conjugué de la particule i

p_α Moment conjugué de la particule α

$p_{\mathbf{k}}^{(\lambda)}$ Moment associé à l'oscillateur harmonique pour le mode $\{\mathbf{k}, \lambda\}$

q_i Position de la particule i

$q_{i(\alpha)}$ Coordonnée selon l'axe cartésien i de la particule α

$q_{\mathbf{k}}^{(\lambda)}$ Position associée à l'oscillateur harmonique pour le mode $\{\mathbf{k}, \lambda\}$

q_α Position de la particule α

\hat{r}_i Vecteur unitaire selon un axe cartésien

\mathbf{D} Excitation électrique

E_{v_0} Énergie du ket $|v_0\rangle$

- F_α Force exercée sur la particule α
- H Hamiltonien
- L Lagrangien
- O_h Notation de la symétrie octaédrique
- P Opérateur projecteur
- T Énergie cinétique
- t_{2g} Niveau électronique fondamental du Ti :saphir
- $U(t', t)$ Opérateur d'évolution entre les instants t et t'
- V Énergie potentielle totale
- V_e Volume d'une boîte cubique
- \mathbf{V}^{\parallel} Vecteur \mathbf{V} longitudinal
- \mathbf{V}^{\perp} Vecteur \mathbf{V} transverse
- θ Fonction de Heaviside
- λ Indice notant une polarisation transverse par rapport au vecteur d'onde
- ρ Densité de charges électriques **dans la section (2.1)**
- ρ_{libre} Densité de charges électriques libres
- ρ Opérateur matrice densité **dans la section (2.3)**
- ρ_{ab} Élément de matrice de l'opérateur matrice densité entre le bra $\langle a|$ et le ket $|b\rangle$
- τ_{v_0} Durée de vie du ket excité $|v_0\rangle$
- ω Pulsation du champ électromagnétique

Chapitre 3

Une transition dipolaire électrique résiduelle

Sommaire

3.1 Règle de Laporte et sa relaxation justifiée	36
3.1.1 Hamiltonien initial	37
3.1.2 Un changement de représentation de l'Hamiltonien initial	38
3.1.3 Des kets propres de H_0	40
3.1.4 Introduction de la règle de Laporte	42
3.2 Émission spontanée pour une transition dipolaire magnétique	44
3.3 Principales hypothèses de calcul	47
3.3.1 Une transition radiative gouvernée par un moment dipolaire électrique résiduel	47
3.3.2 L'approximation de Born-Oppenheimer?	48
3.3.3 Les formes spectrales pour les transitions radiatives	49
3.3.4 Une levée complète de dégénérescence?	50
3.3.5 Une faible concentration de dopant titane	51
3.4 Spectroscopie à partir de la force d'oscillateur	52
3.4.1 Les constantes des moments dipolaires électriques	52
3.4.2 Présentation du calcul	53
3.5 Spectroscopie à partir du temps d'émission spontanée	54
3.5.1 Première innovation	54
3.5.2 Influence de l'indice de réfraction du saphir	57
3.5.3 Seconde innovation	58
3.5.4 Détermination du facteur X et de la quantité $2A^2 + B^2$	61

3.6 Évaluation des sections efficaces	61
3.6.1 Pour l'absorption stimulée	61
3.6.2 Pour l'émission stimulée	64

Ce chapitre se propose de déterminer théoriquement le temps de fluorescence et les sections efficaces d'émission stimulée du cristal de saphir dopé au titane.

Notre approche est de partir d'une transition dipolaire électrique résiduelle traitée comme une transition autorisée, de considérer l'adiabaticité des multiplets et la superposition des bandes simples calculées au moyen d'une théorie simple et analytique de Huang-Rhys.

Nous prouvons que seul l'électron de valence $3d^1$ de l'ion titane intervient dans les calculs des propriétés photo-physiques. Nous montrons comment la règle de Laporte est relaxée par une absence de centro-symétrie pour le site de l'ion titane, dopant inclus dans la matrice diélectrique de corindon. Cette relaxation est ainsi issue d'un abaissement de symétries de O_h vers C_{3v} -de l'octaédrique vers la trigonale.

A la suite de la formulation de l'ensemble de nos hypothèses de modélisation, nous pouvons présenter une théorie simple et analytique exprimant les forces de dipôles, le temps d'émission spontanée et les sections efficaces d'émission stimulée. Nous résolvons notre problème pour tous les processus d'émission. Les expressions trouvées ne sont pas directement fonction d'un facteur, concentration de dopant titane. La variation des formes spectrales des propriétés photo-physiques avec cette concentration de dopant s'exprimerait à travers la variation indirecte des paramètres de la théorie de Huang-Rhys : le paramètre du couplage électron-phonon S et la pulsation effective du phonon ω_l dépendent d'une telle concentration. Nous avons donc une première prise en compte de l'interaction supposée entre les impuretés de titane.

Ces expressions sont ici applicables à une classe large de matériaux : des dopants ions métal-transition dans une matrice diélectrique cristalline. Leur généralisation éventuelle pour les ions terres-rares dans ces mêmes matrices cristallines sera à rechercher au cours de travaux postérieurs à cet exposé.

3.1 Règle de Laporte et sa relaxation justifiée

La règle de Laporte interdit les transitions radiatives de nature dipolaire électrique entre états de même parité. L'absence de centro-symétrie pour l'ion titane va autoriser une transition résiduelle $d \rightarrow d$. Dans le cas du Ti :saphir, nous montrons rigoureusement que seul l'électron de valence $3d^1$ intervient dans la spectroscopie de ce matériau.

Nous chercherons finalement à calculer les valeurs des moments dipolaires électriques résiduels qui pourront être utilisées au chapitre (6).

3.1.1 Hamiltonien initial

Nous considérons le système un ion $-Ti^{3+}$, qui s'est substitué à un ion Al^{3+} , placé dans le champ cristallin produit par une première sphère de coordination constituée de six ligands O^{2-} arrangés selon la symétrie octaédrique O_h et auquel nous adjoignons le champ électromagnétique quantifié. En premier lieu, nous négligeons les modes propres de vibrations du cristal ou plus exactement ceux de la molécule ($Ti^{3+}; 6 O^{2-}$). Les noyaux sont supposés fixes. Nous considérons les n électrons de cet ion titane et nous particularisons l'unique électron $3d^1$. L'Hamiltonien initial de l'ion titane s'évalue comme suit (nous adaptons la ligne de l'exposé tel que présenté dans [11]) :

$$H = \sum_{v=1}^n \frac{(\mathbf{p}_v \otimes 1_{photons} - e\mathbf{A}(\mathbf{q}_v))^2}{2m} + \Phi(\mathbf{q}_1, \dots, \mathbf{q}_n) \otimes 1_{photons} - \sum_{v=1}^n \frac{e\hbar}{2m} (\boldsymbol{\sigma}_v \otimes 1_{photons}) \cdot \mathbf{B}(\mathbf{q}_v) + 1_{atome} \otimes H_{photons} \quad (3.1)$$

$\mathbf{p}_v \otimes 1_{photons}$ désigne l'opérateur quantité de mouvement de l'électron v de l'ion titane. Pour le terme d'énergie cinétique de l'Hamiltonien initial nous avons suivi la prescription du Couplage Électromagnétique Minimal comme démontré en (2.1).

$\mathbf{q}_v \otimes 1_{photons}$ désigne l'opérateur vecteur position de l'électron v de l'ion titane.

m note la masse de l'électron.

$$\Phi(\mathbf{q}_1, \dots, \mathbf{q}_n) = \frac{1}{2} \sum_{\mu \neq v=1}^n \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{\|\mathbf{q}_v - \mathbf{q}_\mu\|} - \sum_{v=1}^n \frac{Ze^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{\|\mathbf{q}_v\|} + V_c(\mathbf{q}_{3d}) + Cte \quad (3.2)$$

L'équation (3.2) représente les potentiels d'interaction coulombiens entre les électrons et entre le noyau et ses électrons. Nous avons rajouté la contribution sur l'électron $3d^1$ de l'ion titane issue du champ cristallin. Sur les autres électrons de l'ion titane, cette contribution se traduit par l'apparition d'une constante dans l'expression de l'énergie potentielle. Z indique le numéro atomique du noyau du titane $Z = 22$.

$$\mathbf{A}(\mathbf{q}_v) = \sum_{\mathbf{k}, \lambda} \mathbf{A}_\lambda(\mathbf{k}, \mathbf{q}_v) \otimes a_{\mathbf{k}\lambda} + adj \quad (3.3)$$

L'équation (3.3) formule le vecteur potentiel du champ électromagnétique (champ noté EM). (\mathbf{k}, λ) indice le mode propre du champ EM associé au vecteur d'onde \mathbf{k} (discrétisé

par les conditions aux limites périodiques sur un cube de taille finie de côté L) et selon l'une des deux polarisations transverses notée par λ . Ce λ prend donc deux valeurs 1 et 2. $a_{\mathbf{k},\lambda}$ représente l'opérateur d'annihilation du mode (\mathbf{k}, λ) . Son conjugué Hermitien note l'opérateur de création du même mode. adj indique le conjugué Hermitien de tous les termes précédents. L'équation ci-dessous formule le champ magnétique :

$$\mathbf{B}(\mathbf{q}_v) = \sum_{\mathbf{k},\lambda} i\mathbf{k} \wedge \mathbf{A}_\lambda(\mathbf{k}, \mathbf{q}_v) \otimes a_{\mathbf{k},\lambda} + adj \quad (3.4)$$

Nous donnons la définition de $\mathbf{A}_\lambda(\mathbf{k}, \mathbf{x})$:

$$\mathbf{A}_\lambda(\mathbf{k}, \mathbf{x}) = \sqrt{\frac{\hbar}{L^3 \epsilon_0}} \frac{\mathbf{e}_\lambda(\mathbf{k}) \cdot e^{i\mathbf{k}\mathbf{x}}}{\sqrt{2\omega(\mathbf{k})}} \quad (3.5)$$

Cette quantité vectorielle (3.5) entre dans les formulations du potentiel vecteur et du champ magnétique quantifiés. $\mathbf{e}_\lambda(\mathbf{k})$ figure le vecteur complexe unitaire associé au mode polarisé (\mathbf{k}, λ) . $\omega(\mathbf{k})$ traduit la pulsation des modes.

$$H_{photons} = \sum_{\mathbf{k},\lambda} \hbar\omega(\mathbf{k}) a_{\mathbf{k},\lambda}^\dagger a_{\mathbf{k},\lambda} \quad (3.6)$$

L'énergie du vide est prise à zéro (première étape pour une procédure de renormalisation). Nous effectuons un changement de représentation de l'Hamiltonien afin de pouvoir décomposer ce dernier en une partie non perturbée (à laquelle nous associons des kets propres) et une partie d'interactions dipolaires et quadripolaires.

3.1.2 Un changement de représentation de l'Hamiltonien initial

Par le biais d'un changement de représentation, l'Hamiltonien initial se met sous la forme :

$$\begin{aligned} \hat{H} = & \sum_{v=1}^n \frac{1}{2m} \left(\mathbf{p}_v \otimes 1_{photons} + e \int_0^1 \xi \mathbf{q}_v \wedge \mathbf{B}(\xi \mathbf{q}_v) d\xi \right)^2 + (\Phi(\mathbf{q}_1, \dots, \mathbf{q}_n) + Q(\mathbf{q}_1, \dots, \mathbf{q}_n)) \otimes 1_{photons} \\ & - \sum_{v=1}^n \frac{e\hbar}{2m} (\boldsymbol{\sigma}_v \otimes 1_{photons}) \cdot \mathbf{B}(\mathbf{q}_v) + \frac{e}{\epsilon_0} \sum_{v=1}^n \int_0^1 \mathbf{q}_v \cdot \boldsymbol{\Pi}(\xi \mathbf{q}_v) d\xi + 1_{atome} \otimes H_{photons} \end{aligned} \quad (3.7)$$

Nous précisons ci-dessous le changement de représentation aboutissant à (3.7). L'action du changement de représentation sur un vecteur d'état est figurée par :

$$\begin{aligned} |\psi\rangle &\rightarrow |\hat{\psi}\rangle = V|\psi\rangle \\ V &= \exp\left(-e\frac{i}{\hbar}\Lambda\right) \end{aligned} \quad (3.8)$$

où l'opérateur Λ est défini comme suit :

$$\Lambda = \Lambda^\dagger = \sum_{v=1}^n \int_0^1 (\mathbf{q}_v \otimes 1_{photons}) \mathbf{A}(\xi \mathbf{q}_v) d\xi = \sum_{v=1}^n \sum_{\mathbf{k}\lambda} \Lambda_\lambda(\mathbf{k}, \mathbf{q}_v) \otimes a_{\mathbf{k}\lambda} + adj \quad (3.9)$$

Nous avons posé :

$$\Lambda_\lambda(\mathbf{k}, \mathbf{q}_v) = \int_0^1 \mathbf{q}_v \cdot \mathbf{A}_\lambda(\mathbf{k}, \xi \mathbf{q}_v) d\xi \quad (3.10)$$

Dans la nouvelle représentation, l'Hamiltonien s'évalue alors : $\hat{H} = VHV^{-1}$. Le calcul est donné dans [11]. Nous disposons des développements limités suivants :

$$\begin{aligned} \int_0^1 \xi \mathbf{q}_v \wedge \mathbf{B}(\xi \mathbf{q}_v) d\xi &= \frac{1}{2} \mathbf{q}_v \wedge \mathbf{B}(\mathbf{0}) + \dots \\ \int_0^1 \mathbf{q}_v \cdot \mathbf{\Pi}(\xi \mathbf{q}_v) d\xi &= \mathbf{q}_v \cdot \mathbf{\Pi}(\mathbf{0}) + \frac{1}{2} \mathbf{q}_v \cdot ((\mathbf{q}_v \cdot \nabla) \mathbf{\Pi})(\mathbf{0}) + \dots \end{aligned} \quad (3.11)$$

Nous remarquons l'apparition du terme purement électronique $Q(\mathbf{q}_1, \dots, \mathbf{q}_n)$, invariant par rotation, que l'on inclut dans l'Hamiltonien de l'ion proprement dit. Nous avons donc $V(\mathbf{q}_v \otimes 1_{photons})V^{-1} = \mathbf{q}_v \otimes 1_{photons}$. En particulier, $V(V_c(\mathbf{q}_{3d}))V^{-1} = V_c(\mathbf{q}_{3d})$ que nous incluons également dans l'Hamiltonien de l'ion.

Nous définissons la grandeur $\mathbf{\Pi}(\mathbf{x})$:

$$\mathbf{\Pi}(\mathbf{x}) = \sum_{\mathbf{k}\lambda} (-i\epsilon_0\omega(\mathbf{k})) a_{\mathbf{k}\lambda} \mathbf{A}_\lambda(\mathbf{k}, \mathbf{x}) + adj \quad (3.12)$$

(3.7) est modifiée comme suit :

$$\begin{aligned} \hat{H} = & (\hat{H}_{atome} \otimes 1_{photons} + 1_{atome} \otimes H_{photons}) + \frac{1}{\epsilon_0} \mathbf{P} \otimes \mathbf{\Pi}(\mathbf{0}) - \sum_{v=1}^n \frac{e\hbar}{2m} (\boldsymbol{\sigma}_v \otimes 1_{photons}) \cdot \mathbf{B}(\mathbf{q}_v) \\ & - \frac{e}{2m} \mathbf{L} \otimes \mathbf{B}(\mathbf{0}) + \frac{e^2}{8m} \sum_{v=1}^n \left(\mathbf{q}_v^2 \otimes \mathbf{B}(\mathbf{0})^2 - (\mathbf{q}_v \otimes \mathbf{B}(\mathbf{0}))^2 \right) + \frac{e}{\epsilon_0} \sum_{v=1}^n \frac{1}{2} \mathbf{q}_v \cdot ((\mathbf{q}_v \cdot \nabla) \mathbf{\Pi})(\mathbf{0}) + \dots \end{aligned} \quad (3.13)$$

Avec les expressions :

$$\hat{H}_{atome} = \sum_{v=1}^n \frac{\mathbf{p}_v^2}{2m} + \Phi(\mathbf{q}_1, \dots, \mathbf{q}_n) + Q(\mathbf{q}_1, \dots, \mathbf{q}_n) \quad \mathbf{P} = \sum_{v=1}^n e \mathbf{q}_v \quad \mathbf{L} = \sum_{v=1}^n \mathbf{q}_v \wedge \mathbf{p}_v \quad (3.14)$$

Nous posons le schéma d'interaction : $\hat{H} = H_0 + H_{int}$ avec les définitions :

$$H_0 = (\hat{H}_{atome} \otimes 1_{photons} + 1_{atome} \otimes H_{photons})$$

$$\begin{aligned} H_{int} = & \frac{1}{\epsilon_0} \mathbf{P} \otimes \mathbf{\Pi}(\mathbf{0}) - \sum_{v=1}^n \frac{e\hbar}{2m} (\boldsymbol{\sigma}_v \otimes 1_{photons}) \cdot \mathbf{B}(\mathbf{q}_v) - \frac{e}{2m} \mathbf{L} \otimes \mathbf{B}(\mathbf{0}) \\ & + \frac{e^2}{8m} \sum_{v=1}^n \left(\mathbf{q}_v^2 \otimes \mathbf{B}(\mathbf{0})^2 - (\mathbf{q}_v \otimes \mathbf{B}(\mathbf{0}))^2 \right) + \frac{e}{\epsilon_0} \sum_{v=1}^n \frac{1}{2} \mathbf{q}_v \cdot ((\mathbf{q}_v \cdot \nabla) \mathbf{\Pi})(\mathbf{0}) \end{aligned} \quad (3.15)$$

\mathbf{P} désigne l'opérateur moment dipolaire électrique total de l'ion. Le terme $\frac{1}{\epsilon_0} \mathbf{P} \otimes \mathbf{\Pi}(\mathbf{0})$ formule l'Hamiltonien dipolaire électrique.

\mathbf{L} désigne l'opérateur moment orbital total de l'ion. Le terme $-\frac{e}{2m} \mathbf{L} \otimes \mathbf{B}(\mathbf{0})$ représente l'Hamiltonien dipolaire magnétique.

$\frac{e}{\epsilon_0} \sum_{v=1}^n \frac{1}{2} \mathbf{q}_v \cdot ((\mathbf{q}_v \cdot \nabla) \mathbf{\Pi})(\mathbf{0})$ indique la contribution du moment quadripolaire électrique à l'énergie d'interaction de l'ion.

3.1.3 Des kets propres de H_0

La configuration électronique de l'ion titane Ti^{3+} libre est $(1s)^2(2s)^2(2p)^6(3s)^2(3p)^6 3d^1$. Il possède donc un électron de valence 3d dont le niveau d'énergie est cinq fois dégénéré (dix fois si nous tenons compte du degré de liberté interne de l'électron; son spin). En présence d'un champ cristallin issu de la première sphère de coordination des ions oxygène, il y a levé partielle de la dégénérescence de cet électron de valence. On dit qu'il est placé sur un site de symétrie octaédrique O_h . Ainsi nous obtenons le niveau fondamental qualifié de t_{2g} (la notation t_2 indique que ce niveau d'énergie est trois fois dégénéré, g vient de l'allemand gerade signifiant pair) et le niveau excité e_g (la notation e indique

que ce niveau d'énergie est deux fois dégénéré). Le champ cristallin décale les énergies de toutes les orbitales de l'ion libre d'une même constante.

Du point de vue des niveaux électroniques, nous travaillons sur deux vecteurs d'état propres de l'ion titane dans le champ cristallin de symétrie O_h :

$$\begin{aligned} |\Phi_0\rangle &= \mathcal{A} (|1s^2\rangle|2s^2\rangle|2p^6\rangle|3s^2\rangle|3p^6\rangle; |T_{2g}\rangle) \\ |\Phi_1\rangle &= \mathcal{A} (|1s^2\rangle|2s^2\rangle|2p^6\rangle|3s^2\rangle|3p^6\rangle; |E_g\rangle) \end{aligned} \quad (3.16)$$

\mathcal{A} désigne le projecteur antisymétriseur. L'argument de ce projecteur est constitué des spin-orbitales de l'ion titane dans le champ cristallin de symétrie O_h . Notons que les deux kets propres précédents ne diffèrent que d'une seule spin-orbitale. Nous n'avons pas indiqué la partie spin dans cette notation des deux vecteurs d'état.

Nous précisons l'espace de Hilbert dans lequel les opérateurs donnés en (3.1.1) et (3.1.2) opèrent. Chaque électron de l'ion possède une spin-orbitale définie dans $L^2(\mathbb{R}^3, d\mathbf{x}) \otimes \mathbb{C}^2$. La partie spatiale comprend les fonctions de \mathbb{R}^3 dans \mathbb{C} de carré sommable. Le spin est représenté par un vecteur à deux composantes prises dans \mathbb{C} . La spin-orbite agit dans le produit tensoriel de ces deux espaces. Les spin-orbitales sont notées comme suit :

$$|+\rangle = \begin{bmatrix} 1 \\ 0 \end{bmatrix}; |-\rangle = \begin{bmatrix} 0 \\ 1 \end{bmatrix}$$

$$|T_{2g}; +\rangle = |T_{2g}\rangle \otimes |+\rangle; |T_{2g}; \epsilon\rangle = |T_{2g}\rangle \otimes |\epsilon\rangle \text{ où } \epsilon = \pm \quad |E_g; \epsilon\rangle = |E_g\rangle \otimes |\epsilon\rangle \quad (3.17)$$

Les vecteurs électroniques $|\Phi_0\rangle$ et $|\Phi_1\rangle$ appartiennent à l'espace de Hilbert $\mathcal{A} \left((L^2(\mathbb{R}^3, d\mathbf{x}) \otimes \mathbb{C}^2)^{\otimes n} \right)$ soit $\mathcal{H}_{\text{électrons}}$. Cet espace représente l'association de n spin-orbitales respectant le principe de Pauli. Les spin-orbitales évoquées sont orthonormales entre elles.

La quantification du champ électromagnétique se réalise dans un espace de Fock \mathcal{F} . Nous adoptons la représentation en nombres d'occupation des modes $\{\mathbf{k}', \lambda'\}$. Le vecteur vide ou obscurité qui correspond à des nombres d'occupation tous à zéro est noté $|\Omega_0\rangle$. Un vecteur dont l'état comprend un seul photon dans le mode $\{\mathbf{k}', \lambda'\}$ est noté dans cette base de représentation en nombres d'occupation :

$$|\{\dots \delta^{\mathbf{k}'\lambda'} \dots\}\rangle = |1 : \mathbf{k}'\lambda'\rangle \in \mathcal{F} \quad (3.18)$$

Nous allons définir le vecteur d'état $|in\rangle$ du système ion titane dans le champ cristallin + le champ EM quantifié en précisant qu'il comprend zéro photon et que l'électron de valence $3d^1$ occupe le niveau d'énergie e_g . Le vecteur $|fin\rangle$ comprend un photon dans le mode $\{\mathbf{k}', \lambda'\}$ et l'électron de valence $3d^1$ occupe le niveau d'énergie t_{2g} . Cela s'écrit :

$$\begin{aligned} |in\rangle &= |\Phi_1\rangle \otimes |\Omega_0\rangle \\ |fin\rangle &= |\Phi_0\rangle \otimes |1: \mathbf{k}'\lambda'\rangle \end{aligned} \quad (3.19)$$

Les vecteurs propres de H_0 (3.15) que sont $|in\rangle$ et $|fin\rangle$ appartiennent à l'espace de Hilbert général $\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{électrons}} \otimes \mathcal{F}$. Nous évaluons l'amplitude de probabilité $\langle fin|H_{int}|in\rangle$. Nous vérifions l'application de la règle de Laporte. Cependant, dans la présente situation pour le Ti :saphir, la relaxation de cette règle se produit. Nous vérifions de même que seul l'électron de valence $3d^1$ de l'ion titane intervient dans la spectroscopie quantitative du matériau.

3.1.4 Introduction de la règle de Laporte

Nous calculons $\langle fin|H_{int}|in\rangle$ lorsque $H_{int} = \frac{1}{\epsilon_0} \mathbf{P} \otimes \mathbf{\Pi}(\mathbf{0})$. Nous appliquons le vecteur nul à la formule (3.12) :

$$\mathbf{\Pi}(\mathbf{0}) = \sqrt{\frac{\hbar}{L^3 \epsilon_0}} \sum_{\mathbf{k}\lambda} \left[\left(-i\epsilon_0 \sqrt{\frac{\omega(\mathbf{k})}{2}} \right) \mathbf{e}_\lambda(\mathbf{k}) a_{\mathbf{k}\lambda} + adj \right] \quad (3.20)$$

$$\begin{aligned} & \langle fin| \frac{1}{\epsilon_0} \mathbf{P} \otimes \mathbf{\Pi}(\mathbf{0}) |in\rangle = \\ & \langle \Phi_0| \otimes \langle 1: \mathbf{k}'\lambda'| \left| \frac{1}{\epsilon_0} \left(\sum_{\nu=1}^n e\mathbf{q}_\nu \right) \otimes \sqrt{\frac{\hbar}{L^3 \epsilon_0}} \sum_{\mathbf{k}\lambda} \left[\left(-i\epsilon_0 \sqrt{\frac{\omega(\mathbf{k})}{2}} \right) \mathbf{e}_\lambda(\mathbf{k}) a_{\mathbf{k}\lambda} + adj \right] \right| \left| \Phi_1\rangle \otimes |\Omega_0\rangle \right. \\ & \left. \right. \end{aligned} \quad (3.21)$$

D'où nous pouvons écrire :

$$\begin{aligned} & \langle fin| \frac{1}{\epsilon_0} \mathbf{P} \otimes \mathbf{\Pi}(\mathbf{0}) |in\rangle = \\ & \frac{1}{\epsilon_0} \sqrt{\frac{\hbar}{L^3 \epsilon_0}} \langle \Phi_0| \sum_{\nu=1}^n e\mathbf{q}_\nu | \Phi_1\rangle \cdot \langle 1: \mathbf{k}'\lambda'| \sum_{\mathbf{k}\lambda} \left[\left(-i\epsilon_0 \sqrt{\frac{\omega(\mathbf{k})}{2}} \right) \mathbf{e}_\lambda(\mathbf{k}) a_{\mathbf{k}\lambda} + adj \right] | \Omega_0\rangle \end{aligned} \quad (3.22)$$

La partie photonique se simplifie comme suit :

$$\begin{aligned}
\langle 1 : \mathbf{k}'\lambda' | \sum_{\mathbf{k}\lambda} \left[\left(-i\epsilon_0 \sqrt{\frac{\omega(\mathbf{k})}{2}} \right) \mathbf{e}_\lambda(\mathbf{k}) a_{\mathbf{k}\lambda} + adj \right] | \Omega_0 \rangle &= \langle 1 : \mathbf{k}'\lambda' | \sum_{\mathbf{k}\lambda} i\epsilon_0 \sqrt{\frac{\omega(\mathbf{k})}{2}} \mathbf{e}_\lambda^*(\mathbf{k}) | 1 : \mathbf{k}\lambda \rangle \\
&= \sum_{\mathbf{k}\lambda} i\epsilon_0 \sqrt{\frac{\omega(\mathbf{k})}{2}} \mathbf{e}_\lambda^*(\mathbf{k}) \langle 1 : \mathbf{k}'\lambda' | 1 : \mathbf{k}\lambda \rangle \\
&= i\epsilon_0 \sqrt{\frac{\omega(\mathbf{k}')}{2}} \mathbf{e}_{\lambda'}^*(\mathbf{k}') \quad (3.23)
\end{aligned}$$

Nous évaluons maintenant la partie électronique $\langle \Phi_0 | \sum_{v=1}^n \mathbf{e} \mathbf{q}_v | \Phi_1 \rangle = DE$. C'est un élément de matrice entre deux fonctions d'onde d'un système à n particules décrites par des spin-orbitales. $|\Phi_0\rangle$ et $|\Phi_1\rangle$ diffèrent d'au plus une spin-orbitale ($n-1$ spin-orbitales sont égales) et $\sum_{v=1}^n \mathbf{e} \mathbf{q}_v$ est une observable à un corps. Nous appliquons alors les règles de sommation pour les observables à un corps comme précisées dans [12] et [13].

$$DE = \langle \Phi_0 | \sum_{v=1}^n \mathbf{e} \mathbf{q}_v | \Phi_1 \rangle = \langle T_{2g} | \otimes \langle \epsilon' | \mathbf{e} \mathbf{q} | E_g \rangle \otimes \langle \epsilon \rangle = \langle T_{2g} | \mathbf{e} \mathbf{q} | E_g \rangle \cdot \langle \epsilon' | \epsilon \rangle = 0 \quad (3.24)$$

DE s'évalue ainsi comme un élément de matrice d'un opérateur pour une unique particule dans l'espace de Hilbert $L^2(\mathbb{R}^3, d\mathbf{x}) \otimes \mathbb{C}^2$. Même si les spins sont identiques, DE est nul parce que l'opérateur vecteur position est impaire et les fonctions d'onde associées à $|E_g\rangle$ et $|T_{2g}\rangle$ sont toutes les deux de même parité (ici paires). Nous concluons :

$$\langle fin | \frac{1}{\epsilon_0} \mathbf{P} \otimes \mathbf{\Pi}(\mathbf{0}) | in \rangle = 0 \quad (3.25)$$

Il ne devrait pas y avoir de contribution du moment dipolaire électrique aux processus d'émission spontanée de notre système. (3.25) est conforme à la règle de Laporte. Pour un matériau comme le saphir dopé au titane, la réalité est tout autre : nous observons une relaxation à l'égard de cette règle.

Le procédé de sommation pour les observables à un corps justifie que nous ne retenions que l'électron de valence (un seul électron) dans la détermination des propriétés radiatives et spectroscopiques de ce matériau.

Une transition dipolaire électrique résiduelle prime sur les autres types de transition radiative (de nature dipolaire magnétique ou quadripolaire électrique). Cette hiérarchie est indiquée dans [14]. Nous allons évaluer théoriquement le temps d'émission spontanée pour une transition radiative uniquement gouvernée par le moment dipolaire magnétique sous l'hypothèse que le réseau cristallin est figé (absence de déplacements des

noyaux- pas de phonons- et absence de couplage électron-phonon).

3.2 Émission spontanée pour une transition dipolaire magnétique

Nous montrerons que moins la force d'oscillateur est importante, plus le temps d'émission spontanée d'un niveau excité est grand. Nous exploitons la méthode de la résolvante telle que présentée au chapitre sur les outils théoriques. Nous évaluons ainsi le temps d'émission spontanée lorsque la transition radiative est supposée de nature dipolaire magnétique. Le réseau cristallin est ici considéré comme figé; c'est un calcul purement électronique que nous menons. L'Hamiltonien d'interaction se formule $H_{int} = -\frac{e}{2m}\mathbf{L} \otimes \mathbf{B}(\mathbf{0})$. Nous reproduisons le calcul effectué en [15] en l'adaptant à notre situation. Dans cette référence l'auteur introduit les états pour la matière dénommé $|\nu, M_J\rangle$ correspondant aux vecteurs $|\dots, J, M_J\rangle$. Cette dernière notation est caractéristique des ions libres hors champ cristallin pour lesquels la symétrie sphérique est respectée. Pour notre problème, nous assimilons ν soit à e_g soit à t_{2g} et M_J désigne alors les dégénérescences de ces deux niveaux. Nous indiquons sommairement les étapes de notre calcul. Nous calculons ainsi l'élément de matrice de l'opérateur de déplacement spectral parmi l'état initial excité et dégénéré, comme indiqué dans le chapitre (2).

Dans l'approximation au second ordre, l'opérateur de déplacement spectral s'évalue :

$$R(z) \cong H_{int} + H_{int} \frac{Q}{z\mathbb{1} - H_0} H_{int} \quad (3.26)$$

Il s'agit de déterminer les éléments de matrice de l'opérateur ci-dessus :

$$R_{M_J', M_J}^\nu(z) \equiv \langle \Omega_0 | \otimes \langle \nu, M_J' | R(z) | \nu, M_J \rangle \otimes | \Omega_0 \rangle \quad (3.27)$$

Le projecteur Q peut s'écrire :

$$Q = \sum_{(\nu'', \{n \dots\}) \neq (\nu, \{0 \dots\})} \sum_{M_J''} |\nu'', M_J''\rangle \otimes |\{n \dots\}\rangle \langle \{n \dots\}| \otimes \langle \nu'', M_J''| \quad (3.28)$$

Nous formulons H_{int} :

$$H_{int} = -\frac{e}{2m}\mathbf{L} \otimes \mathbf{B}(\mathbf{0}) = -\frac{e}{2m} \sqrt{\frac{\hbar}{V\epsilon_0}} \sum_{\mathbf{k}\lambda} \frac{1}{\sqrt{2\omega(\mathbf{k})}} \mathbf{L} \cdot \{i\mathbf{k} \wedge \mathbf{e}_\lambda(\mathbf{k}) \otimes a_{\mathbf{k}\lambda} + adj\} \quad (3.29)$$

Remarquons alors que :

$$\begin{aligned} & \langle \{n \dots\} | \otimes \langle v'', M_J'' | H_{int} | v, M_J \rangle \otimes | \Omega_0 \rangle \\ & = \left\{ \begin{array}{l} \frac{e}{2m} \sqrt{\frac{\hbar}{V \epsilon_0}} \frac{1}{\sqrt{2\omega(\mathbf{k})}} \langle v'', M_J'' | \mathbf{L} | v, M_J \rangle \cdot (i\mathbf{k} \wedge \mathbf{e}_\lambda^*(\mathbf{k})) \text{ si } \{n \dots\} = \{\delta^{\mathbf{k}\lambda}\} \\ 0 \text{ autrement} \end{array} \right\} \end{aligned} \quad (3.30)$$

Les seuls éléments de matrice non nuls de H_{int} impliquent les vecteurs : $|v'', M_J''\rangle \otimes |\delta^{\mathbf{k}\lambda}\rangle \equiv |v'', M_J''\rangle \otimes |\mathbf{k}, \lambda\rangle$. Ces vecteurs explicitent des états à un photon. Nous pouvons écrire :

$$R_{M_J', M_J}^v(z) = \sum_{v'' M_J''} \sum_{\mathbf{k}\lambda} \frac{\langle \Omega_0 | \otimes \langle v, M_J' | H_{int} | v'', M_J'' \rangle \otimes |\mathbf{k}, \lambda\rangle \langle \mathbf{k}, \lambda | \otimes \langle v'', M_J'' | H_{int} | v, M_J \rangle \otimes | \Omega_0 \rangle}{z - E_{v''} - \hbar\omega(\mathbf{k})} \quad (3.31)$$

(3.31) s'évalue alors comme :

$$R_{M_J', M_J}^v(z) = \frac{e^2}{4m^2} \sum_{v'' M_J''} \sum_{\mathbf{k}\lambda} \frac{\hbar}{2V_e \epsilon_0 \omega(\mathbf{k})} \frac{[\langle v, M_J' | \mathbf{L} | v'', M_J'' \rangle \cdot (-i\mathbf{k} \wedge \mathbf{e}_\lambda(\mathbf{k}))] [(i\mathbf{k} \wedge \mathbf{e}_\lambda^*(\mathbf{k})) \cdot \langle v'', M_J'' | \mathbf{L} | v, M_J \rangle]}{z - E_{v''} - \hbar\omega(\mathbf{k})} \quad (3.32)$$

En prenant une base de vecteurs réels $\mathbf{e}_\lambda(\mathbf{k}) = \mathbf{e}_\theta$ ou \mathbf{e}_ϕ , nous formulons après intégration sur le volume des vecteurs d'onde \mathbf{k} et par un calcul analogique avec [15] :

$$R_{M_J', M_J}^v(z) = \frac{e^2}{4m^2 (2\pi)^3} \sum_{v'' M_J''} \int_0^{+\infty} \frac{k^2 dk \hbar k^2}{2\epsilon_0 c k (z - E_{v''} - \hbar c k)} \cdot \frac{8\pi}{3} \langle v, M_J' | \mathbf{L} | v'', M_J'' \rangle \langle v'', M_J'' | \mathbf{L} | v, M_J \rangle \quad (3.33)$$

Nous obtenons donc l'expression :

$$R_{M_J', M_J}^v(z) = \frac{e^2 \hbar}{24\pi^2 c m^2 \epsilon_0} \int_0^{+\infty} k^3 dk \sum_{v''} \frac{1}{z - E_{v''} - \hbar c k} \sum_{M_J''} \langle v, M_J' | \mathbf{L} | v'', M_J'' \rangle \langle v'', M_J'' | \mathbf{L} | v, M_J \rangle \quad (3.34)$$

Un calcul mené sur les fonctions d'onde de l'ion titane pour l'approximation hydrogénoïde (les parties radiales sont exprimées à partir des règles de Slater) et pour la symétrie octaédrique O_h a montré :

$$\begin{aligned} \sum_{M_J''} \langle v, M_J' | \mathbf{L} | v'', M_J'' \rangle \langle v'', M_J'' | \mathbf{L} | v, M_J \rangle &= R_{v''}^v \cdot \delta_{M_J' M_J} \\ R_{v''}^v &= \sum_{M_J''} \langle v, M_J | \mathbf{L} | v'', M_J'' \rangle \langle v'', M_J'' | \mathbf{L} | v, M_J \rangle \end{aligned} \quad (3.35)$$

Tous calculs faits, nous écrivons :

$$R_{M_J', M_J}^V(z) = \delta_{M_J', M_J} R^V(z, E_\infty) = \frac{e^2 \hbar}{24\pi^2 c m^2 \epsilon_0} \int_0^{\frac{E_\infty}{\hbar c}} dk \sum_{v''} \frac{k^3}{z - E_{v''} - \hbar c k} R_{v''}^V \quad (3.36)$$

Nous avons introduit une énergie de coupure E_∞ pour les photons. Après intégration, nous avons le résultat :

$$R^V(z, E_\infty) = \frac{e^2}{24\pi^2 m^2 \epsilon_0 \hbar^3 c^5} \sum_{v''} R_{v''}^V \left\{ (z - E_{v''})^3 \ln \left(\frac{z - E_{v''}}{z - E_{v''} - E_\infty} \right) - \frac{E_\infty^3}{3} - \frac{E_\infty^2}{2} (z - E_{v''}) - E_\infty (z - E_{v''})^2 \right\} \quad (3.37)$$

Nous exploitons la prescription $z = E + i \times 0$.

$$\text{Im} \{ R^V(z = E + i \times 0, E_\infty) \} = - \frac{e^2}{24\pi m^2 \epsilon_0 \hbar^3 c^5} \sum_{\{v''/E_{v''} < E_v\}} R_{v''}^V (E_v - E_{v''})^3 \quad (3.38)$$

Cette partie imaginaire est indépendante de l'énergie de coupure. Finalement, nous écrivons :

$$\Gamma_v = |2 \cdot \text{Im} \{ R^V(z = E + i \times 0, E_\infty) \}| = \frac{e^2}{12\pi m^2 \epsilon_0 c^2} \sum_{\{v''/E_{v''} < E_v\}} R_{v''}^V \left(\frac{E_v - E_{v''}}{\hbar c} \right)^3 \quad (3.39)$$

Le temps d'émission spontanée à partir du niveau d'énergie E_v s'évalue comme $\kappa_v = \frac{\hbar}{\Gamma_v}$.

$$\boxed{\frac{1}{\kappa_v} = \frac{e^2}{12\pi m^2 \epsilon_0 c^2 \hbar} \sum_{\{v''/E_{v''} < E_v\}} R_{v''}^V \left(\frac{E_v - E_{v''}}{\hbar c} \right)^3} \quad (3.40)$$

L'application numérique à partir des fonctions d'onde de l'électron de valence $3d^1$ de l'ion titane Ti^{3+} (en admettant une partie radiale donnée par les règles de Slater) explicite $R_{v''}^V$ comme étant égal à $6\hbar^2$. Nous prenons comme différence d'énergies celle due à la partie électronique du système soit 2,01 eV (ligne à zéro-phonon). Le temps d'émission spontanée est ainsi évalué à 1.45 ms. C'est deux à trois ordres de grandeur plus grand par rapport à la valeur observée. Cela signifie que nous devons prendre en compte le couplage électron-phonon et déterminer la nature exacte du dipôle permettant la transition radiative. Le saphir dopé au titane n'est pas régi par une transition dipolaire magnétique.

Nous avons tenu à présenter ce calcul parce qu'il présente une étape dans nos recherches et pourrait s'appliquer pour les phénomènes régis par le moment dipolaire magnétique. Cependant, il faudrait toujours l'adapter en incluant l'influence de la matrice

sur les ions impuretés. L'influence du couplage électron-phonon responsable d'une forme spectrale pour les grandeurs spectroscopiques est toujours à considérer. Nous pensons néanmoins que, pour les matériaux magnétiques, la transition radiative de nature dipolaire magnétique due aux phénomènes électroniques primerait sur les phénomènes issus de la "vibronique". Il nous faudrait étudier les formes spectrales - si elles existent - de grandeurs spectroscopiques gouvernées par un Hamiltonien d'interaction dipolaire magnétique afin de pouvoir nous déterminer absolument. Nous allons exposer les hypothèses permettant l'évaluation des propriétés photo-physiques du Ti :saphir lorsque ces dernières sont gouvernées par un Hamiltonien d'interaction dipolaire électrique qualifié de résiduel, mais traité comme une grandeur autorisée.

3.3 Principales hypothèses de calcul

Nous explicitons l'ensemble des hypothèses de calcul exploitées dans le calcul des grandeurs spectroscopiques du Ti :saphir. La configuration trigonale est associée à des moments dipolaires électriques résiduels. Nous évaluons ceux-ci.

3.3.1 Une transition radiative gouvernée par un moment dipolaire électrique résiduel

Nous citons [16]. "L'absence de centre de symétrie dans la matrice de corindon rend possible la transition dipolaire électrique $d \rightarrow d$. Cela peut se produire parce que des termes de puissance impaire peuvent associer les fonctions d paires avec des fonctions impaires. Ces dernières peuvent être soit des fonctions atomiques p (sur l'ion titane) soit des orbitales moléculaires impaires sur les ligands (les ions oxygène de la première sphère de coordination)". Nous citons ensuite [17]. "Puisque le site du cation manque de symétrie d'inversion (la symétrie du site est rigoureusement C_3 plutôt que O_h pour le centre d'un octaèdre régulier), le champ cristallin mélange des états de parité impaire avec les orbitales [atomiques] d de parité paire, levant l'interdit d'une transition de parité paire vers paire. Il en résulte que les transitions dipolaires électriques sont autorisées et les bandes de fluorescence et d'absorption du saphir dopé au titane sont plutôt importantes ($\sigma \sim 10^{-20} \text{ cm}^2$) et largement indépendantes de la température". De plus S.Sugano et al.[14] indiquent une hiérarchie des forces d'oscillateur en fonction de la nature des mécanismes de transitions radiatives. Ils notent dans un ordre décroissant les valeurs de forces d'oscillateur pour la transition dipolaire électrique autorisée (1 à 0.1), la transition dipo-

laire électrique dite interdite (10^{-4}), la transition dipolaire magnétique (10^{-6}) et enfin la transition quadripolaire électrique (10^{-7}).

Notre approche fondamentale est donc d'utiliser les formules spectroscopiques (probabilités de transition par unité de temps et sections efficaces de transition) de la transition dipolaire électrique autorisée, c'est-à-dire de faire comme si la règle de Laporte était levée, cependant que les valeurs des moments dipolaires résiduels sont alors bien plus petites que celles pour une transition autorisée. Nous raisonnons donc comme si la transition de moments résiduels était bien permise. Nous donnons un second argument en rapport avec la forme spectrale des propriétés spectroscopiques. Ces propriétés sont modulées par une fonction dépendant de la fréquence ou de la longueur d'onde. Les bandes spectrales en absorption et en émissions sont des données expérimentales. Nous observons une absorption dans le vert à environ 485 nm (avec deux pics) et des émissions dont une fluorescence dans le rouge à 800 nm (une bande simple sans structure interne apparente). Selon P. Albers et al. [18], la ligne à zéro-phonon se situe à 617.7 nm (pour cette longueur d'onde, la valeur de la forme spectrale est nulle). Nous constatons donc un décalage de Stokes et nous interprétons que 485nm et 800 nm correspondent aux transitions les plus probables conformes au principe de Franck-Condon. Si la forme spectrale correspondait à une transition interdite en raison de la parité, elle présenterait une vallée aux longueurs d'onde correspondant à celles fournies par le précédent principe. Or nous observons un maximum pour de telles longueurs d'onde. En fait, la forme spectrale correspond plutôt à une transition radiative dite autorisée (un moment dipolaire électrique qui serait autorisé mais de valeur résiduelle, voir aussi [19]). Nous reviendrons ultérieurement sur la détermination de la forme spectrale en rapport avec la présente approche. Lorsque la forme spectrale [pour une transition interdite en raison de la parité] est intégrée avec la fréquence, elle est proportionnelle à la température T . Dans [16], il est indiqué que le ratio des forces d'oscillateur perpendiculaire et parallèle à l'axe c du corindon est quasi-constant (variation de moins de 10 pourcent) pour une plage de températures de 0 K jusqu'à 300 K. Cela n'est toujours pas consistant avec une transition dite interdite mais plutôt avec celle qualifiée d'autorisée.

3.3.2 L'approximation de Born-Oppenheimer?

Selon les arguments fournis par I.B. Bersuker [20] et V.Z. Polinger [21], la séparation entre les variables électroniques et les déplacements nucléaires de notre système peut

être rigoureusement posée lorsque la condition suivante est remplie :

$$\hbar\omega_{\Gamma}(m) \ll |E_k - E_m| \text{ pour tous } k \neq m \text{ et tous } \Gamma \quad (3.41)$$

Γ note une représentation irréductible de la symétrie du site, E_k et E_m notent l'énergie des états k et m . $\omega_{\Gamma}(m)$ désigne le quantum de vibration relatif au mode actif de la représentation Γ . Quand une telle condition est vérifiée, nous sommes autorisé à utiliser l'approximation de Born-Oppenheimer. Cette dernière consiste à résoudre premièrement le problème électronique et à utiliser ses solutions pour l'étude des mouvements vibrationnels des noyaux.

Nous adoptons le point de vue suivant. Nous considérons des transitions radiatives entre des états multiplets qualifiés d'adiabatiques parce que l'énergie de séparation est beaucoup plus grande que le quantum de vibration. **Aussi, pour notre système, la véritable hypothèse est cette adiabaticité des multiplets.** La présente analyse suit la ligne de présentation donnée par Yu.E. Perlin et al. [22]. Nous réaffirmons que notre problème a bien une nature "vibronique" et cette dernière contribue minoritairement à la relaxation de la règle de Laporte. Pour mener des calculs analytiques quant aux grandeurs quantitatives de spectroscopie, nous adoptons le schéma paradigmatique suivant : des transitions radiatives autorisées entre deux multiplets électroniques adiabatiques modulées par une forme spectrale qui, entre ces deux multiplets, se calcule de manière vibrationnelle. Nous retrouvons un tel positionnement dans [18] où est évoqué explicitement un traitement vibrationnel exploitant le modèle de Huang-Rhys pour la détermination de la forme spectrale des bandes spectroscopiques.

3.3.3 Les formes spectrales pour les transitions radiatives

Une autre hypothèse fondamentale implique la superposition de bandes simples avec différents décalages de Stokes et intensités (reliées aux moments dipolaires) quant à la formulation de la forme spectrale résultante. Cette hypothèse est consistante avec ce qui est affirmé dans [22]. Nous serons au premier chef intéressé par les émissions spontanée et stimulée. Nous observons que les formes spectrales de ces émissions ont une nature gaussienne à hautes températures et n'exhibent pas de structure interne complexe comme celle d'un double pics mesurée pour l'absorption stimulée. Aussi, notre première contribution à la présente théorie (nous dirions notre thèse au sens propre) est de ne considérer qu'un seul ensemble de paramètres de Huang-Rhys (un seul facteur S et une seule pulsation de phonon ω_l , décrivant sommairement le couplage électron-phonon)

bien qu'il y ait des transitions radiatives entre différents états des deux multiplets et qu'il faudrait en toute rigueur associer à chaque couple d'états impliqué dans la transition un jeu de paramètres de Huang-Rhys spécifique. Une telle innovation nous autorise à factoriser l'expression de la forme spectrale en face des forces de dipôles dans la formulation des probabilités de transition par unité de temps. Nous n'avons pas évalué la forme spectrale d'une transition interdite en raison de la parité parce que nous n'observons pas une vallée (valeur zéro) aux longueurs d'onde correspondant au décalage de Stokes le plus probable fourni par le principe de Franck-Codon. Nous ne pensons pas qu'une superposition de bandes simples aurait pu combler cette vallée. Nous avons donc supposé que la forme spectrale était bien déterminée à partir de transitions dipolaires électriques dites résiduelles mais reconnues autorisées. Notre thèse est consistante avec une forme spectrale calculée selon un modèle simple de Huang-Rhys comme présenté dans [23] et [24]. La forme spectrale des processus d'émission est ainsi multi-phononique et de nature gaussienne à hautes températures.

3.3.4 Une levée complète de dégénérescence ?

Selon la théorie du champ cristallin, les niveaux électroniques d'énergie de l'ion titane subissent une levée progressive de dégénérescence lorsque la symétrie du site du cation Ti^{3+} est corrélativement abaissée. Nous avons ainsi le schéma :

$$O_h \supset C_{3v} \supset C_3 \quad (3.42)$$

Nous commentons l'équation précédente. La plus haute symétrie est dite cubique ou octaédrique. Quand la symétrie du site est abaissée, nous obtenons le groupe de symétrie C_{3v} qui est nommé trigonal. Dans les références [16] et [17], la symétrie du site est à nouveau abaissée afin d'obtenir finalement le groupe cyclique C_3 . Tout groupe cyclique est commutatif. De plus, nous savons que toute représentation irréductible associée à un groupe de symétrie commutatif a pour dimension un (elle est donc non-dégénérée), ce qui signifie que tous les états dans un tel champ cristallin sont eux aussi non-dégénérés. Nous avons alors théoriquement une levée complète de la dégénérescence pour notre système.

Cependant nous devons être conscient de plusieurs points.

1. la séparation des niveaux d'énergie lors du passage de C_{3v} à C_3 peut être inférieure au quantum de vibration, aussi physiquement il serait plutôt injustifié de soutenir que la levée aurait été opérée;

2. la séparation des niveaux d'énergie lors du passage de O_h à C_{3v} est de quelques quanta de vibration, il est alors beaucoup plus justifié de soutenir que la levée est opérée;
3. la levée progressive de dégénérescence introduit de plus en plus de constantes explicitant les valeurs des moments dipolaires électriques résiduels (pour C_{3v} nous avons trois constantes (A,B et C) et pour C_3 nous en avons quatre (A,B,C et D)).

Ces constantes sont introduites dans la référence [16]. D'après la théorie quantique, l'abaissement de la symétrie du site du cation permet l'introduction de constantes évaluant les moments dipolaires électriques et nous pouvons affirmer une hiérarchie entre (A, B,C) et D (D est plus petite d'un ordre de grandeur que les autres constantes). Lorsque nous calculons les propriétés spectroscopiques du saphir dopé au titane, nous considérons toujours les états électroniques multiplets associés à la symétrie O_h évalués dans la base de vecteurs fournie par C.J. Ballhausen [25]. Nous réaffirmons que notre problème se définit par des transitions radiatives entre deux multiplets électroniques adiabatiques dont la séparation en énergie est supérieure au quantum de vibration. L'évocation d'une levée de dégénérescence est faite parce qu'elle est responsable de l'introduction de constantes décrivant les moments dipolaires électriques résiduels ou plus exactement les éléments de matrice de l'opérateur moment dipolaire électrique de l'électron $3d^1$ de l'ion titane entre les kets à un électron définis par C.J. Ballhausen.

3.3.5 Une faible concentration de dopant titane

Notre matériau est le Ti :saphir ($Ti : Al_2O_3$). Les échantillons peuvent avoir des concentrations typiques en ion titane de l'ordre de $3.3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Nous déclarons que les valeurs expérimentales de la spectroscopie du Ti :saphir ont été obtenues avec de telles concentrations. Nous affirmons en outre que les facteurs du couplage électron-phonon, comme ceux considérés par exemple dans un modèle simple de Huang-Rhys, peuvent varier avec les concentrations du dopant. Aussi, nos modélisations indépendantes de cette concentration seront inévitablement imprécises pour les matériaux laser de larges diamètres inhomogènes en dopant.

Nous prenons le parti de ne considérer que des concentrations de dopant faibles, ainsi l'interaction entre les ions impurétés sera négligée et les propriétés spectroscopiques sont alors indépendantes de ces concentrations. Dans les formules des forces d'oscillateur ou de sections efficaces, le facteur concentration de dopant n'intervient pas directement. C'est une très forte limitation de notre théorie parce que pour les lasers à très hautes

puissances crête ces concentrations de dopants peuvent être très importantes et interviennent dans le phénomène de "self-quenching". Dans des travaux à réaliser postérieurement à cette thèse, nous relaxerons cette limitation. Nous tentons une certaine prise en compte de ces concentrations au chapitre (4) lors de l'établissement d'une formule de l'indice de réfraction isotrope du Ti :saphir en fonction précisément de la concentration du dopant titane.

Les différentes hypothèses de nos modélisations sont connues. Pour le Ti :saphir, nous menons des évaluations quantitatives aux sections suivantes en termes de forces d'oscillateur, de temps d'émission spontanée et de sections efficaces d'émission stimulée des processus radiatifs.

3.4 Spectroscopie à partir de la force d'oscillateur

Nous n'avons considéré aucun modèle quant à l'expression des constantes de moments dipolaires électriques résiduels. C'est là la force et la généralité de notre approche. Nous allons évaluer la constante C à partir d'une mesure de la force d'oscillateur.

3.4.1 Les constantes des moments dipolaires électriques

Quand nous considérons une symétrie de site C_3 , il y a 18 transitions dipolaires électriques à un électron. Nous les décrivons toutes à l'aide de quatre constantes A,B,C et D. x et y sont des axes perpendiculaires à l'axe noté conventionnellement c et z correspond à un axe parallèle à ce dernier. e est issu du niveau 2E_g (deux fois dégénéré) tandis que t vient du niveau ${}^2T_{2g}$ (trois fois dégénéré). La notation en minuscule correspond à celle d'états à un seul électron. Les présents états e et t sont précisés dans [25].

	M_x	M_y	M_z
$e_x t_x$	A	$-2\sqrt{2}D$	C
$e_y t_y$	-A	$2\sqrt{2}D$	C
$e_x t_y$	$-2\sqrt{2}D$	-A	$-3D$
$e_y t_x$	$-2\sqrt{2}D$	-A	$3D$
$e_x t_z$	B	-D	0
$e_y t_z$	D	B	0

TABLE 3.1 – Moments dipolaires électriques pour le Ti :saphir (ref[16])

Le tableau (3.1) donne les valeurs des moments de transition à un électron telles que renseignées dans [16] (éléments de matrice de l'opérateur transition dipolaire électrique

entre les kets e et t). Nous ne retenons aucun modèle pour la description des quatre constantes en fonction des paramètres du champ cristallin. Par contre, nous savons qu'un mélange des états 3d et 4p de l'ion central Ti^{3+} est à l'œuvre. Les quatre constantes sont exprimées en mètre. Une hiérarchie existe entre elles, à savoir que D est bien plus faible que A, B et C.

3.4.2 Présentation du calcul

Comme effectué dans [26], nous formulons la force d'oscillateur en absorption pour un couple d'états par :

$$f = \frac{4\pi m}{h} \int |M|^2 \nu F(\nu) d\nu \quad (3.43)$$

M désigne l'élément de matrice de l'opérateur moment dipolaire électrique entre ce couple d'états, élément de matrice calculé à partir du principe de Franck-Condon. $F(\nu)$ est la forme spectrale de la transition. Quand M est constant (en particulier indépendant de la fréquence), nous faisons apparaître la quantité :

$$\int \nu F(\nu) d\nu \quad (3.44)$$

En suivant le calcul des moments selon M.H.L. Pryce [27], pour un couple d'états donnés lors de l'absorption, la quantité précédente est égale à la fréquence la plus probable selon le principe de Franck-Condon. Les transitions radiatives en absorption présentent une structure en double pics (il y a ainsi une structure interne qui pourrait être modélisée par plusieurs jeux de paramètres de Huang-Rhys selon notre thèse). Appelons $F_1(\nu)$ la forme spectrale associée à la sous-bande présentant un maximum à la longueur d'onde 485 nm pour les paramètres de Huang-Rhys S_1 et ω_{l1} . Appelons $F_2(\nu)$ la forme spectrale associée à la sous-bande présentant un maximum à la longueur d'onde 550 nm pour les paramètres de Huang-Rhys S_2 et ω_{l2} . Nous avons après intégration :

$$\int \nu F_1(\nu) d\nu = \nu_1 \quad \int \nu F_2(\nu) d\nu = \nu_2 \quad (3.45)$$

Assignons au couple $(e_x; t_x)$ la fréquence ν_1 et le jeu S_1 et ω_{l1} .

Assignons au couple $(e_y; t_y)$ la fréquence ν_2 et le jeu S_2 et ω_{l2} .

Les autres éléments de matrice n'apportent que très peu de contribution eu égard à la valeur nulle ou D négligeable devant C. Nous sommes sur les différentes transitions $t_x \rightarrow e_x$, etc... et nous moyennons sur les trois états du triplet de départ $(t_x, t_y$ et $t_z)$. Nous

formulons provisoirement la force d'oscillateur, pour l'absorption parallèle à l'axe c :

$$f_{\parallel} = \frac{4\pi m}{3h} C^2 (v_1 + v_2) \quad (3.46)$$

Nous avons la relation :

$$f \propto \int \sigma(v) dv \quad (3.47)$$

D'après M.Lax [28] et D.L. Dexter [29], la section efficace d'absorption comprend un facteur $\frac{(n^2+2)^2}{9n}$ où $n = 1.768$ pour le saphir. Donc f comprend ce même facteur qui explicite la traversée de la matrice avec l'indice de réfraction n et la prise en compte des corrections de champ local (électrodynamique de la matière et différence entre les champs électriques local et incident). Finalement nous obtenons :

$$f_{\parallel} = \frac{(n^2 + 2)^2}{9n} \frac{4\pi m}{3h} C^2 (v_1 + v_2) \quad (3.48)$$

Nous écrivons :

$$C = \left(\frac{27 f_{\parallel} n h}{4\pi (n^2 + 2)^2 m (v_1 + v_2)} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.49)$$

S.K. Mohapatra et al. [30] fournissent la valeur $2.5 \cdot 10^{-4}$ pour $f_{\parallel 1}$. L'application numérique donne $C_1 = 4.755 \cdot 10^{-12}$ m soit 0.228 D. D.S. McClure donne la valeur $f_{\parallel 2} = 2.64 \cdot 10^{-5}$ d'où $C_2 = 1.545 \cdot 10^{-12}$ m soit 0.074 D. Nous pensons que les valeurs indicées par 1 sont plus exactes. Nous avons évalué une constante de moment dipolaire électrique résiduel notée C . Nous allons calculer la force de dipôles pour un axe perpendiculaire à l'axe c du corindon.

3.5 Spectroscopie à partir du temps d'émission spontanée

Nous exploitons la valeur du temps d'émission spontanée pour une température inférieure à 200 K. Nous appliquons donc la méthode de la résolvante pour une transition dipolaire électrique autorisée, bien que notre système soit gouverné par une transition qualifiée de résiduelle. Nous présentons nos deux innovations données ci-dessous.

3.5.1 Première innovation

Nous considérons ici une émission spontanée à partir du niveau e_g . Le temps de relaxation (transition non-radiative) vers le niveau à zéro phonon avant la transition radiative est de l'ordre de la pico-seconde donc négligeable devant le temps d'émission spon-

tanée. Nous admettons que seul le niveau à zéro phonon est peuplé et nous raisonnons à partir d'un unique électron sur le niveau e_g à zéro phonon. Nous partons donc d'un état électronique initial et particulier (e_g et zéro phonon) et nous transitons vers des états électroniques t_{2g} à plusieurs phonons plus ou moins probables. L'important est ici d'évaluer ce caractère probable. F.A. Reuse [31] a établi, pour l'inverse du temps d'émission spontanée d'un état excité dégénéré, l'équation :

$$w = \sum_{[v''|E_{v''}<E_v]} R_{v''}^v \frac{16\pi^3}{3\epsilon_0 c^3 h} (v - v'')^3 \quad (3.50)$$

En utilisant le formalisme de la méthode de la résolvante pour un opérateur moment dipolaire électrique nous trouvons l'équation précédente.

E_v désigne l'énergie de l'état initial à zéro phonon (nous nous situons sur la ligne à zéro phonon d'énergie 2.00716 eV) et $E_{v''}$ note l'énergie des états finaux à plusieurs phonons. $R_{v''}^v$ est une somme de carrés de moments dipolaires électriques fois la charge de l'électron aussi au carré, donc selon l'unité Debye au carré.

M. Brousseau [32] indique que la probabilité de transition par unité de temps (nous adaptons les notations à notre problème) des niveaux électroniques $e_g \rightarrow t_{2g}$ en fonction de la fréquence d'émission s'évalue :

$$\delta^2 W_{E_g \rightarrow T_{2g}}(h\nu) = V_e \frac{8\pi^3 e^2 n}{h^4 c^3} (h\nu)^3 |D_{e,t}^0|^2 \times dh\nu d\Omega I_{E_g \rightarrow T_{2g}}(h\nu) \quad (3.51)$$

où V_e est le volume de l'échantillon, n l'indice de réfraction du milieu optique, $D_{e,t}^0$ est l'élément de matrice du moment dipolaire électrique d'ordre zéro. Cet élément se confond avec ceux de la table donnés ci-dessus. Nous ne retenons que l'ordre zéro car les fonctions d'onde électroniques dépendent peu des déplacements des noyaux. Nous précisons $I_{E_g \rightarrow T_{2g}}(h\nu)$:

$$I_{E_g \rightarrow T_{2g}}(h\nu) = \sum_p W_p \delta(h\nu - E_0 + p\hbar\omega_l) \quad (3.52)$$

$E_0 = 2.00716$ eV est l'énergie à zéro phonon. ω_l note la pulsation unique et effective des phonons impliqués dans le couplage électron-phonon. W_p désigne le paramètre de Franck-Condon défini ultérieurement.

En intégrant sur les fréquences de 0 à E_0 , nous obtenons :

$$\delta W_{E_g \rightarrow T_{2g}} = V_e \frac{8\pi^3 e^2 n}{h^4 c^3} \sum_p (E_0 - p\hbar\omega_l)^3 |D_{e,t}^0|^2 d\Omega W_p \quad (3.53)$$

Nous sommions sur les états finaux et nous prenons la moyenne "thermique" sur les états

initiaux. En outre, nous sommions sur une base de vecteurs de polarisation et intégrons sur l'angle solide de l'espace entier qui vaut 4π . Nous obtenons alors le résultat de la méthode de la résolvante modifié par rapport à (3.50) en raison de la prise en compte du couplage électron-phonon. Cette sommation globale n'est possible que si, pour chaque valeur de p , W_p est mis en facteur commun. Examinons cet argument :

$$\begin{aligned}\delta W_1 &= K \cdot (v - v'')^3 \int D_1^2 d\Omega W_p \\ \delta W_2 &= K \cdot (v - v'')^3 \int D_2^2 d\Omega W_p \\ \delta W_1 + \delta W_2 &= K \cdot (v - v'')^3 \left\{ \int D_1^2 d\Omega + \int D_2^2 d\Omega \right\} \cdot W_p\end{aligned}\quad (3.54)$$

Le terme de l'équation précédente, entre crochets, est résolu en appliquant la méthode de la résolvante et nous obtenons la formule (3.50) mais avec les présentes substitutions $\boxed{(v - v'') \rightarrow (E_0 - p\hbar\omega_l) \quad \text{et} \quad (R_{v''}^v \rightarrow R_{v''}^v \cdot W_p)}$. La force de dipôles est donc évaluée comme une partie purement électronique multipliée par une partie vibrationnelle. Insistons encore sur le point suivant : c'est l'observation de l'absence d'une structure interne du spectre d'émission qui nous permet de faire l'hypothèse d'un unique jeu de paramètres de Huang-Rhys pour les transitions radiatives entre états des deux multiplets : W_p le facteur de Franck-Condon est ainsi factorisé. **C'est là notre première innovation.**

Nous donnons une seconde justification de ces substitutions. Les formules des probabilités de transitions radiatives par unité de temps dépendent de l'élément de matrice entre états initial et final du moment dipolaire électrique total mis au carré $|\langle f | \mathbf{M} | i \rangle|^2$. Le principe de Franck-Condon ainsi que le caractère adiabatique des multiplets de notre système (factorisation des fonctions d'onde électroniques et de déplacements des noyaux) permettent d'écrire la substitution :

$$\langle f | \mathbf{M} | i \rangle \rightarrow \langle T_{2g} | e\mathbf{R} | E_g \rangle \cdot \int X_{T_{2g}n'}^*(X) X_{E_g n''}(X) dX \quad (3.55)$$

X est une notation symbolique pour les coordonnées des noyaux. $X_{T_{2g}n'}$ et $X_{E_g n''}$ désignent les fonctions d'onde des déplacements nucléaires associées respectivement aux électrons des niveaux t_{2g} et e_g . Le module au carré s'écrit alors conformément à [23] :

$$|\langle f | \mathbf{M} | i \rangle|^2 \rightarrow |\langle T_{2g} | e\mathbf{R} | E_g \rangle|^2 \cdot \left| \int X_{T_{2g}n'}^*(X) X_{E_g n''}(X) dX \right|^2 \quad (3.56)$$

Nous sommions sur un intervalle de largeur égal à l'énergie d'un quantum de vibration

(l'énergie d'un phonon effectif $\hbar\omega_l$). L'intégrale de recouvrement pour les fonctions d'onde des déplacements nucléaires s'évalue alors comme suit :

$$\sum_{\Delta\nu} \left| \int X_{T_{2g}^*}(\mathbf{X}) X_{E_g n''}(\mathbf{X}) d\mathbf{X} \right|^2 = F(\nu) \cdot \Delta\nu \quad (3.57)$$

$F(\nu)$ note la forme spectrale et $\Delta\nu = \frac{\omega_l}{2\pi}$. Nous posons alors :

$$\sum_{\Delta\nu} |\langle f | \mathbf{M} | i \rangle|^2 = |\langle T_{2g} | e\mathbf{R} | E_g \rangle|^2 \cdot F(\nu) \Delta\nu \quad (3.58)$$

Sous l'hypothèse d'une forme spectrale commune à tous les couples d'états impliqués dans l'émission spontanée, $F(\nu)\Delta\nu$ se met en facteur et après intégration nous pouvons évoquer la substitution ($R_{\nu''}^{\nu} \rightarrow R_{\nu''}^{\nu} \cdot W_p$). Avec nos notations :

$$\sum_{\Delta\nu} \left| \int X_{T_{2g}^*}(\mathbf{X}) X_{E_g n''}(\mathbf{X}) d\mathbf{X} \right|^2 = F(\nu) \cdot \Delta\nu = W_p \quad (3.59)$$

Selon [33], le paramètre p du facteur de Franck-Condon suit l'équation :

$$h\nu = E_0 - p \cdot \hbar\omega_l \quad (3.60)$$

L'inverse du temps d'émission spontanée respecte donc la formule intermédiaire :

$$w = \sum_{p=0}^{\frac{E_0}{\hbar\omega_l}} R_{\nu''}^{\nu} W_p \frac{16\pi^3}{3\epsilon_0 c^3 h^4} (E_0 - p\hbar\omega_l)^3 \quad (3.61)$$

3.5.2 Influence de l'indice de réfraction du saphir

Selon [28], nous incluons l'effet de la matrice hôte en saphir d'indice de réfraction approché $n = 1.768$. Cet effet est désigné par un facteur prenant en compte la vitesse de phase dans le milieu (qui égale, dans notre matériau supposé non-dispersif, la vitesse de groupe). La fréquence est prise au cube, aussi ce facteur s'évalue :

$$\frac{n^3}{\epsilon_r} = n \quad (3.62)$$

La correction du champ local due à l'électrodynamique de la matière se formule selon [29] :

$$\left(\frac{E_l}{E} \right)^2 \quad (3.63)$$

E_l et E sont respectivement les champs électriques local et incident. En supposant que nous déterminons ces champs en un nœud d'un cristal régulier du système cubique (ce qui est en effet une approximation), nous avons l'expression de Lorentz :

$$E_l = E + \frac{P}{3\epsilon_0} \quad (3.64)$$

où P est le vecteur polarisation (unité : coulomb par mètre carré $C \cdot m^{-2}$). Dans de très nombreux diélectriques (dont les cristaux du système cubique), la polarisation qui apparaît sous l'action d'un champ électrique peu intense est sensiblement proportionnelle à ce champ incident :

$$P = \chi_e \epsilon_0 E \quad (3.65)$$

où χ_e désigne la susceptibilité électrique du milieu au point considéré. Pour un matériau supposé diélectrique linéaire et isotrope, nous relierons cette susceptibilité à la permittivité relative ϵ_r :

$$\epsilon_r = 1 + \chi_e \quad (3.66)$$

Nous avons la formule intermédiaire :

$$E_l = E \left(1 + \frac{\chi_e}{3}\right) \quad (3.67)$$

L'équation (3.63) se réécrit :

$$\left(\frac{E_l}{E}\right)^2 = \left(1 + \frac{\chi_e}{3}\right)^2 = \frac{(2 + (1 + \chi_e))^2}{9} = \frac{(2 + \epsilon_r)^2}{9} = \frac{(2 + n^2)^2}{9} \quad (3.68)$$

Nous apportons ces corrections à la formule de l'inverse du temps d'émission spontanée (3.61) :

$$w = n \cdot \frac{(2 + n^2)^2}{9} \cdot \sum_{p=0}^{\frac{E_0}{\hbar\omega_l}} R_{v''}^v W_p \frac{16\pi^3}{3\epsilon_0 c^3 h^4} (E_0 - p\hbar\omega_l)^3 \quad (3.69)$$

3.5.3 Seconde innovation

Selon [23] et [34], en admettant que le paramètre de Franck-Condon W_p est fourni par une simple théorie de Huang-Rhys, nous posons :

$$W_p = \left(\frac{\bar{n} + 1}{\bar{n}}\right)^{\frac{p}{2}} \cdot \exp(-S(2\bar{n} + 1)) \cdot I_p \left(2S\sqrt{\bar{n}(\bar{n} + 1)}\right) \quad (3.70)$$

\bar{n} représente la moyenne thermique du nombre quantique vibrationnel qui est le même pour tous les oscillateurs dans notre cas. Il est fonction de la température T et incorpore la moyenne thermique sur les états initiaux :

$$\bar{n}(T) = \left\{ \exp \left[\frac{\hbar\omega_l}{kT} \right] - 1 \right\}^{-1} \quad (3.71)$$

k note la constante de Boltzmann. S est le paramètre de Huang-Rhys décrivant le couplage électron-phonon. $I_p(x)$ est la fonction de Bessel d'ordre p. Aux hautes températures, nous avons l'approximation :

$$W_p \simeq \left(4\pi kT \frac{S}{\hbar\omega_l} \right)^{-0.5} \exp \left(-\frac{(p-S)^2 \hbar\omega_l}{4kTS} \right) \quad (3.72)$$

L'enveloppe du spectre est donc une gaussienne classique aux hautes températures.

Suivant [35], nous définissons $R_{\nu''}^{\nu}$. Nous vérifions que la somme des carrés des moments dipolaires électriques vérifie l'équation suivante (3.73). Cette condition, vérifiée pour le processus d'émission spontanée, n'est pas respectée pour le processus d'absorption stimulée qui possède une forme spectrale complexe. Si notre thèse consiste à essayer d'exploiter la méthode de la résolvante pour le processus d'émission spontanée, elle exclut cette méthode lors de l'évaluation quantitative du processus d'absorption stimulée. Nous n'avons pas su élucider cette dissymétrie quant aux processus, mais nous soutenons que la simple vérification de (3.73) permet de poursuivre :

$$\sum_{M_J''} \langle \nu, M_J' | \mathbf{P} | \nu'', M_J'' \rangle \cdot \langle \nu'', M_J'' | \mathbf{P} | \nu, M_J \rangle = R_{\nu''}^{\nu} \delta_{M_J' M_J} \quad (3.73)$$

\mathbf{P} est le moment dipolaire électrique de l'électron de valence $3d^1$. Nous en prenons les éléments de matrice entre les états e et t. Nous avons les correspondances $\nu \rightarrow e$ et $\nu'' \rightarrow t$.

$$\begin{aligned} & \langle \nu, M_J' | x\mathbf{e}_x + y\mathbf{e}_y + z\mathbf{e}_z | \nu'', M_J'' \rangle \cdot \langle \nu'', M_J'' | x\mathbf{e}_x + y\mathbf{e}_y + z\mathbf{e}_z | \nu, M_J \rangle = \\ & \quad (\langle \nu, M_J' | x | \nu'', M_J'' \rangle \mathbf{e}_x + \langle \nu, M_J' | y | \nu'', M_J'' \rangle \mathbf{e}_y + \langle \nu, M_J' | z | \nu'', M_J'' \rangle \mathbf{e}_z) \cdot \\ & \quad (\langle \nu'', M_J'' | x | \nu, M_J \rangle \mathbf{e}_x + \langle \nu'', M_J'' | y | \nu, M_J \rangle \mathbf{e}_y + \langle \nu'', M_J'' | z | \nu, M_J \rangle \mathbf{e}_z) = \\ & \quad (\langle \nu, M_J' | x | \nu'', M_J'' \rangle \cdot \langle \nu'', M_J'' | x | \nu, M_J \rangle) + (\langle \nu, M_J' | y | \nu'', M_J'' \rangle \cdot \langle \nu'', M_J'' | y | \nu, M_J \rangle) + \\ & \quad (\langle \nu, M_J' | z | \nu'', M_J'' \rangle \cdot \langle \nu'', M_J'' | z | \nu, M_J \rangle) \end{aligned} \quad (3.74)$$

Nous sommes sur les différents états finaux t_x , t_y et t_z et nous prenons deux états initiaux différents (on note \mathbf{R} l'opérateur vecteur position); les éléments de matrice des moments dipolaires électriques sont des nombres réels-nous utilisons les valeurs du tableau (3.1) :

$$\sum_{t_x, t_y, t_z} \langle e_x | \mathbf{R} | t, M_J'' \rangle \cdot \langle t, M_J'' | \mathbf{R} | e_y \rangle =$$

$$A(-2\sqrt{2}D) + (-2\sqrt{2}D)(-A) + C(3D) + (-2\sqrt{2}D)(-A) + (-A)(2\sqrt{2}D) + (-3D)C + BD + (-D)B + 0 = 0$$
(3.75)

Nous évaluons maintenant $R_{v''}^v$ pour un même état initial :

$$\sum_{t_x, t_y, t_z} \langle e_x | \mathbf{R} | t, M_J'' \rangle \cdot \langle t, M_J'' | \mathbf{R} | e_x \rangle =$$

$$A^2 + 8D^2 + C^2 + 8D^2 + A^2 + 9D^2 + B^2 + D^2 = 2A^2 + B^2 + C^2 + 26D^2$$
(3.76)

$$\sum_{t_x, t_y, t_z} \langle e_y | \mathbf{R} | t, M_J'' \rangle \cdot \langle t, M_J'' | \mathbf{R} | e_y \rangle =$$

$$8D^2 + A^2 + 9D^2 + A^2 + 8D^2 + C^2 + D^2 + B^2 = 2A^2 + B^2 + C^2 + 26D^2$$
(3.77)

L'équation (3.73) est respectée par les moments dipolaires électriques indiqués au tableau (3.1). Finalement, nous avons la formule :

$$R_t^e = e^2 \cdot (2A^2 + B^2 + C^2 + 26D^2) = e^2 C^2 \cdot \left(2 \frac{A^2}{C^2} + \frac{B^2}{C^2} + 1 + 26 \frac{D^2}{C^2} \right) = e^2 C^2 \cdot X$$
(3.78)

L'équation (3.69) devient si nous supposons les moments dipolaires électriques résiduels, de l'électron $3d^1$, indépendants de la fréquence :

$$w = n \cdot \frac{(2+n^2)^2}{9} \cdot e^2 C^2 X \cdot \left[\frac{16\pi^3}{3\epsilon_0 c^3 h^4} \right] \sum_{p=0}^{\frac{E_0}{\hbar\omega_l}} W_p (E_0 - p\hbar\omega_l)^3$$
(3.79)

Notre seconde innovation est d'introduire la somme $I(E_0, S, \omega_l, T) = \sum_{p=0}^{\frac{E_0}{\hbar\omega_l}} W_p (E_0 - p\hbar\omega_l)^3$.

Nous explicitons nos hypothèses pour les applications numériques. Suivant les valeurs des paramètres de Huang-Rhys données dans [18], nous avons admis $S = 11.25$ et $\hbar\omega_l = 392 \text{ cm}^{-1}$. Dans cet article, les auteurs modélisent la courbe de variation du temps d'émission spontanée avec la température. Cette courbe est fournie avec un seul jeu de

paramètres de Huang-rhys. Pour notre théorie, nous nous plaçons à 200 K. A cette température, nous pouvons négliger les transitions non-radiatives (efficacité quantique proche de 1) et le temps d'émission spontanée est alors uniquement expliqué par une formule de transition radiative dépendante d'un moment dipolaire électrique résiduel. L'indice de réfraction est pris moyen pour une valeur de 1.768. Le temps d'émission spontanée est de $3.85 \mu\text{s}$ en dessous de 200 K. Nous supposons que les valeurs des constantes A, B, C et D sont les mêmes pour tous les phénomènes radiatifs : absorption stimulée, émissions stimulée et spontanée. C'est un pré-supposé théorique que nous vérifierons en conclusion.

3.5.4 Détermination du facteur X et de la quantité $2A^2 + B^2$

Nous travaillons à partir de l'équation (3.79). X s'évalue comme

$$X = \frac{w}{n} \frac{9}{(2+n^2)^2} \frac{1}{e^2 C_1^2} \left[\frac{3\epsilon_0 c^3 h^4}{16\pi^3} \right] \frac{1}{I(E_0, S, \omega_l, T)} \quad (3.80)$$

L'application numérique fournit $X = 1.8110$.

Nous savons que $C = 4.755 \times 10^{-12} \text{ m}$. Nous avons la relation : $2A^2 + B^2 = C^2(X - 1) = 1.8337 \times 10^{-23} \text{ m}^2$. En exploitant les valeurs de ces forces de dipôles, nous estimons les bons ordres de grandeur des sections efficaces d'émission stimulée.

3.6 Évaluation des sections efficaces

Nous sommes maintenant en mesure d'évaluer de façon analytique les différentes sections efficaces des processus radiatifs parce que nous connaissons les valeurs des forces de dipôles (carrés des moments dipolaires électriques résiduels pour la partie électronique).

3.6.1 Pour l'absorption stimulée

Nous allons tenter une évaluation de la section efficace d'absorption stimulée pour une polarisation parallèle à l'axe c. Nous négligeons les transitions dipolaires électriques entre $e_x|t_y$ et $e_y|t_x$ gouvernées par la constante D de magnitude très faible par rapport à la constante C. Nous supposons que les formes spectrales multiplient le carré des moments dipolaires électriques comme déjà mené lors de l'évaluation des moments aux sections (3.4) et au (3.5) en conformité avec le principe de Franck-Condon. Citant l'article [18], pour le jeu de paramètres de Huang-Rhys ($S = 11.25$ et $\hbar\omega_l = 392 \text{ cm}^{-1}$) nous

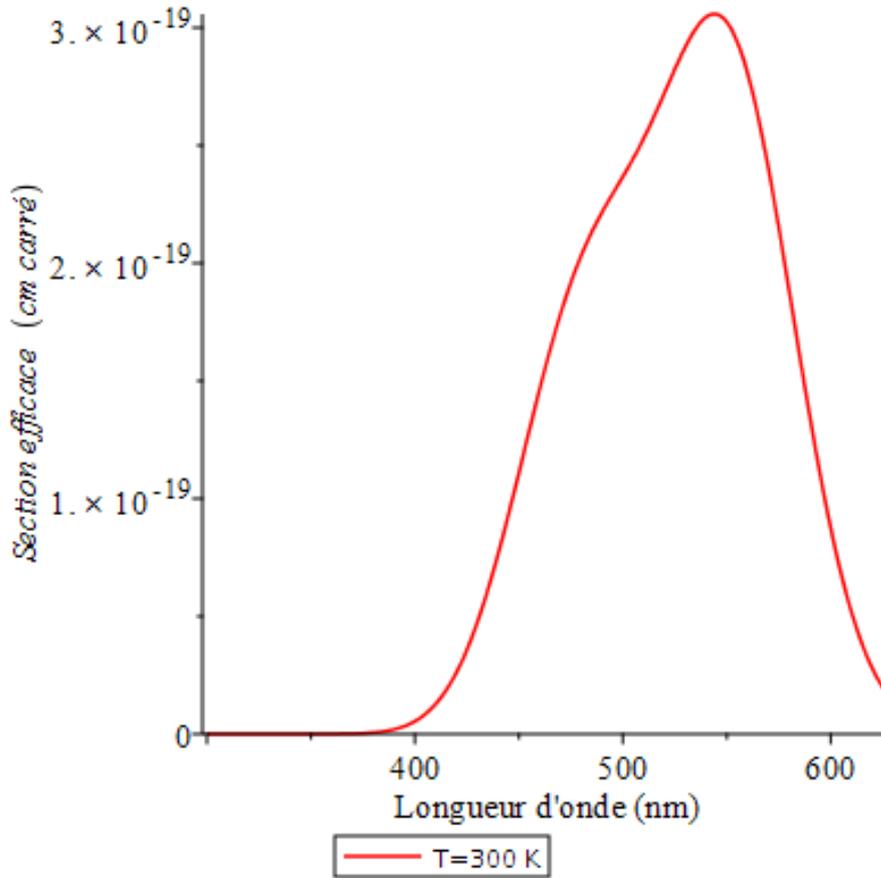


FIGURE 3.1 – Modélisation : section efficace d'absorption stimulée, selon l'axe c , en cm^2 en fonction de la longueur d'onde en nm , à température ambiante (à partir de l'équation (3.86))

calculons que nous avons un maximum d'absorption stimulée pour la longueur d'onde 485 nm correspondant à la formule $h\nu = E_0 + S\hbar\omega_l$. En supposant une seule fréquence de phonons effective ($\hbar\omega_l = 392 \text{ cm}^{-1}$), nous pouvons calculer un paramètre $S' = 5.08$ tel qu'une seconde forme spectrale présente un maximum à 550 nm. Ainsi nous disposons de deux formes spectrales de paramètres ($S = 11.25$ et $\hbar\omega_l = 392 \text{ cm}^{-1}$) et ($S' = 5.08$ et $\hbar\omega_l = 392 \text{ cm}^{-1}$). Nous affectons chacune à la constante C . Nous avons supposé un modèle de superposition de bandes simples.

La section efficace d'un processus élémentaire d'absorption stimulée pour un ion isolé s'évalue :

$$\sigma(in \rightarrow fin) = \frac{2\pi^2\nu}{c\epsilon_0} \delta(E_{fin} - E_{in} - h\nu) \times \left| \mathbf{e}_\lambda(\mathbf{k}) \cdot \mathbf{P}_{if}^* \right|^2 \quad (3.81)$$

Pour un flux de photons polarisés selon l'axe c , après application du principe de Franck-Condon (introduction du facteur de Franck-Condon W_p) et prise en compte d'un indice

moyen de réfraction n , nous réécrivons :

$$\begin{aligned}\sigma(t \rightarrow e) &= \frac{(n^2 + 2)^2}{9n} \frac{2\pi^2 \nu e^2}{c\epsilon_0} C^2 I_{t \rightarrow e}(h\nu) \\ I_{t \rightarrow e}(h\nu) &= \sum_p W_p \delta(h\nu - E_0 - p\hbar\omega_l) \quad h\nu = E_0 + p\hbar\omega_l\end{aligned}\quad (3.82)$$

où W_p est à nouveau donné par l'équation (3.70) et son approximation (3.72). Pour les deux formes spectrales, nous supposons que nous avons la même ligne à zéro phonon E_0 . Nous avons supposé une même fréquence effective de phonon aussi le paramètre p sera déterminé identique pour de telles formes spectrales. L'approximation du facteur de Franck-Condon se lit :

$$W_p \simeq \left(4\pi kT \frac{S}{\hbar\omega_l}\right)^{-0.5} \exp\left(-\frac{(p-S)^2 \hbar\omega_l}{4kTS}\right)\quad (3.83)$$

Nous nous plaçons à la fréquence ν_* . Nous avons alors une valeur p_* . En intégrant entre $h\nu_*$ et $h\nu_* + \hbar\omega_l$ l'équation (3.82) nous écrivons :

$$\hbar\omega_l \cdot \sigma(\nu_*) = \frac{(n^2 + 2)^2}{9n} \frac{2\pi^2 \nu_* e^2}{c\epsilon_0} C^2 W_{p_*}\quad (3.84)$$

Cela se formule :

$$\sigma(\nu_*) = \frac{(n^2 + 2)^2}{9n} \frac{2\pi^2 \nu_* e^2}{c\epsilon_0} C^2 W_{p_*} \frac{1}{\hbar\omega_l}\quad (3.85)$$

Nous prenons maintenant en compte les degrés de dégénérescence des états initiaux et finaux. Nous sommes sur les états finaux et nous moyennons sur les états initiaux (nous divisons par trois en raison de l'existence de trois états initiaux t) :

$$\sigma_{||}(\nu) = \frac{(n^2 + 2)^2}{9n} \frac{2\pi^2 \nu e^2}{c\epsilon_0} \frac{C^2}{3} \frac{1}{\hbar\omega_l} \cdot (W_p(S) + W_p(S'))\quad (3.86)$$

Nous raisonnons à $T = 300$ K et nous cherchons à évaluer le maximum de la section efficace d'absorption stimulée. Notre application numérique donne une valeur maximale à 544 nm de 30.45×10^{-20} cm². Nous montrons ci-dessus la courbe de la section efficace d'absorption stimulée en fonction de la longueur d'onde telle que prévue par notre modélisation. Elle reproduit un profil spectral pour la section efficace d'absorption stimulée avec une structure composée de deux pics, mais ces-derniers ont des positions inverses par rapport à l'expérience. De plus, notre valeur maximale modélisée est environ 3 fois trop grande par rapport à la valeur expérimentale donnée dans [36]. Nous nous intéressons ensuite aux sections efficaces de gain.

3.6.2 Pour l'émission stimulée

Les profils spectraux de la fluorescence du Ti :saphir pour les deux températures 300 et 200 K sont ici exposés.

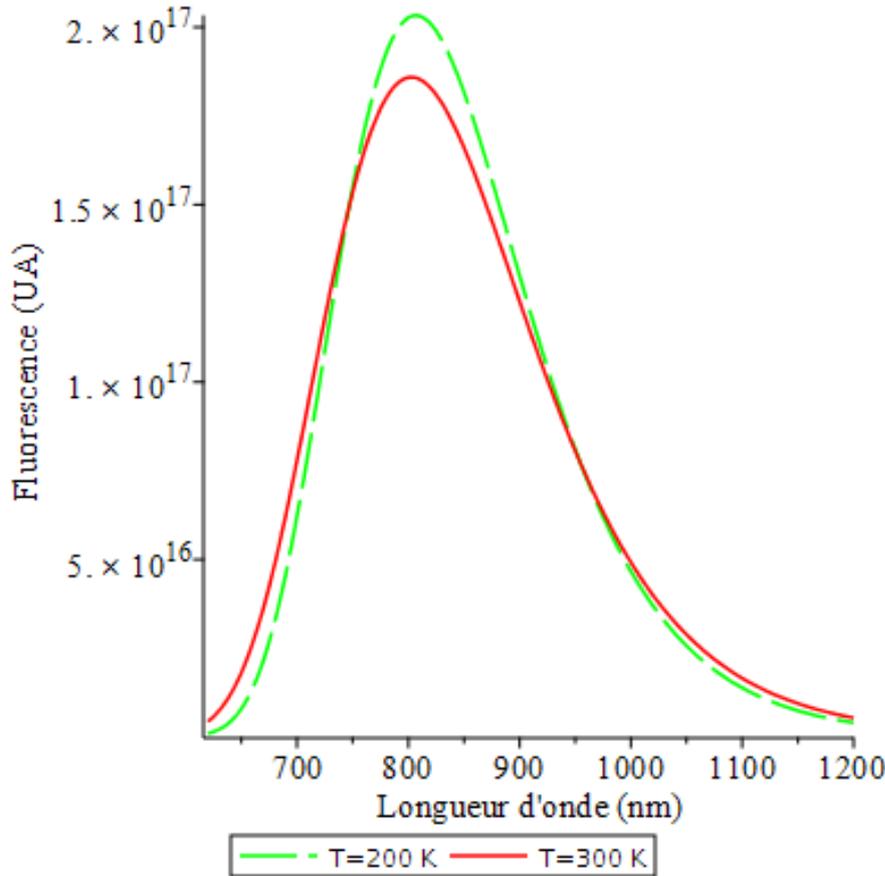


FIGURE 3.2 – Fluorescence : modélisation du profil spectral à deux températures 200 et 300 K, à partir de l'équation (3.91).

Nous utilisons une formule donnée par J.M. Eggleston et al [37]. La section efficace d'émission stimulée parallèle à l'axe c s'évalue :

$$\sigma_{\pi}(\lambda) = \frac{\eta \lambda^5 I_{\pi}(\lambda)}{8\pi c \kappa} \left[\frac{n_{\pi}^2}{3} \int \lambda I_{\pi}(\lambda) d\lambda + \frac{2n_{\sigma}^2}{3} \int \lambda I_{\sigma}(\lambda) d\lambda \right]^{-1} \quad (3.87)$$

η représente l'efficacité de fluorescence de valeur 0.82 à la température ambiante 300 K. $\kappa = 3.2 \mu\text{s}$ désigne le temps d'émission spontanée à cette même température. $n_{\pi} = 1.752$ et $n_{\sigma} = 1.760$ sont les indices de réfraction respectivement relatifs aux axes parallèle et perpendiculaires à l'axe c . I_{π} et I_{σ} sont les intensités d'émission spontanée évaluées théoriquement dans le présent exposé. Nous formulons ces intensités comme suit :

$$W(p, T) = \left(\frac{\bar{n}(T) + 1}{\bar{n}(T)} \right)^{\frac{p}{2}} \cdot \exp\{-S(2\bar{n}(T) + 1)\} \cdot I_p(2S \sqrt{\bar{n}(T)(\bar{n}(T) + 1)}) \quad (3.88)$$

Les intensités I_π et I_σ sont proportionnelles, en nombre continu de quanta de phonons effectifs p , à l'expression :

$$W_q : (p, T) \rightarrow \left(\frac{E_0 - p \hbar \omega_l}{h} \right)^3 \cdot W(p, T) \quad (3.89)$$

p s'exprime en fonction de la longueur d'onde de la lumière émise spontanément :

$$p = \frac{E_0 - \frac{hc}{\lambda}}{\hbar \omega_l} \quad (3.90)$$

Les jeux de paramètres de Huang-Rhys (entre différents couples d'états réalisant la transition radiative d'émission spontanée) sont pris identiques pour les deux intensités radiatives parallèle et perpendiculaire à l'axe c . Nous rappelons ici notre première innovation : nous n'avons retenu que le jeu de paramètres $S = 11.25$ et $\hbar \omega_l = 392 \text{ cm}^{-1}$ pour ces deux types d'intensités quant à des transitions entre des états quelconques. Ces intensités radiatives sont proportionnelles à la force des dipôles. Nous obtenons alors :

$$\begin{aligned} I_\pi(\lambda) &\propto \left(\frac{1}{\lambda} \right)^3 \cdot W \left(\frac{E_0 - \frac{hc}{\lambda}}{\hbar \omega_l}, T \right) \cdot 2C^2 \\ I_\sigma(\lambda) &\propto \left(\frac{1}{\lambda} \right)^3 \cdot W \left(\frac{E_0 - \frac{hc}{\lambda}}{\hbar \omega_l}, T \right) \cdot (2A^2 + B^2) \end{aligned} \quad (3.91)$$

Nous rappelons la valeur de C , moment dipolaire électrique, fournie par la mesure de la force d'oscillateur selon le processus d'absorption stimulée : $C = 4.755 \times 10^{-12} \text{ m}$. Nous connaissons la valeur de l'expression $2A^2 + B^2 = 1.8337 \times 10^{-23} \text{ m}^2$.

A température ambiante, le calcul numérique à partir de l'équation (3.87) donne une valeur maximale pour la section efficace d'émission stimulée selon l'axe c à 866 nm de $3.47 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$. Expérimentalement, nous observons une valeur maximale de $3.0 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ à 800 nm. Nous avons modélisé un bon ordre de grandeur pour cette quantité spectroscopique. Nous donnons ci-dessous les courbes modélisées et expérimentales des sections efficaces d'émission stimulée selon l'axe c et perpendiculaire à ce dernier (figure (3.3)).

Notre modélisation nous permet de tracer les courbes des sections efficaces selon la polarisation π en fonctions de trois températures 300, 200 et 100 K. Nous choisissons d'utiliser l'équation (3.87) et nous supposons que le ratio $\frac{n}{k}$ est constant quand la température varie. De telles simulations peuvent être menées parce que nous connaissons les forces de dipôles que nous posons toujours indépendantes de la température. Notre modélisation des formes spectrales nous fournit la figure donnée ci-dessous (figure (3.4)).

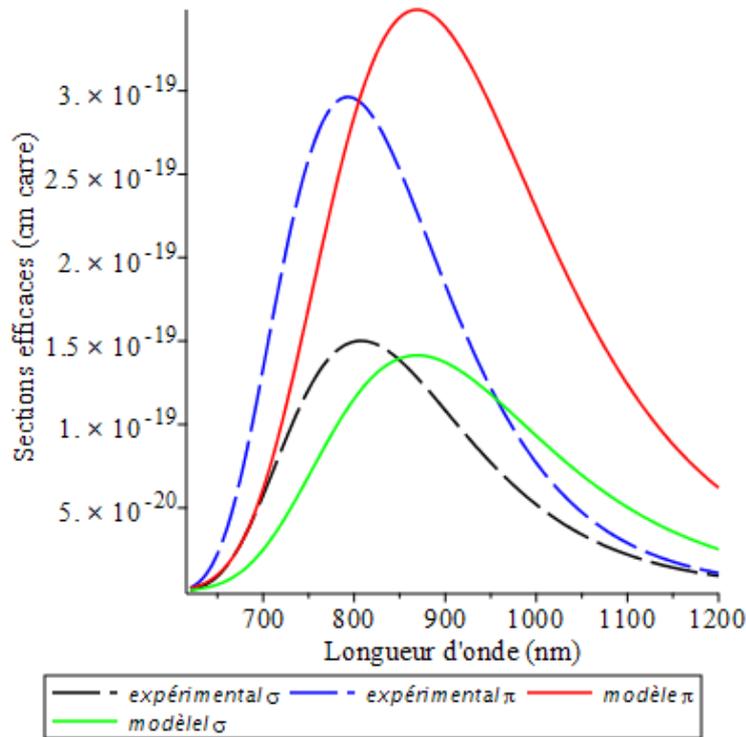


FIGURE 3.3 – A température ambiante, sections efficaces d'émission stimulée en cm^2 en fonction de la longueur d'onde en nm. Selon les deux polarisations π et σ . Les modèles sont issus de l'équation (3.87) et les courbes expérimentales proviennent de la référence [37]

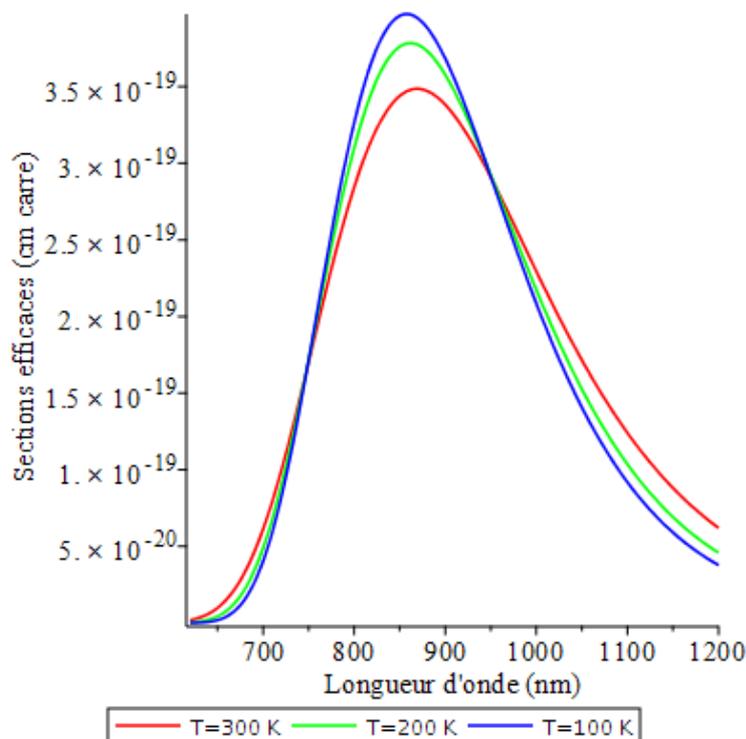


FIGURE 3.4 – Sections efficaces d'émission stimulée en cm^2 en fonction de la longueur d'onde en nm et aux trois températures 300, 200 et 100 K. Selon la polarisation π . La modélisation est issue de l'équation (3.87)

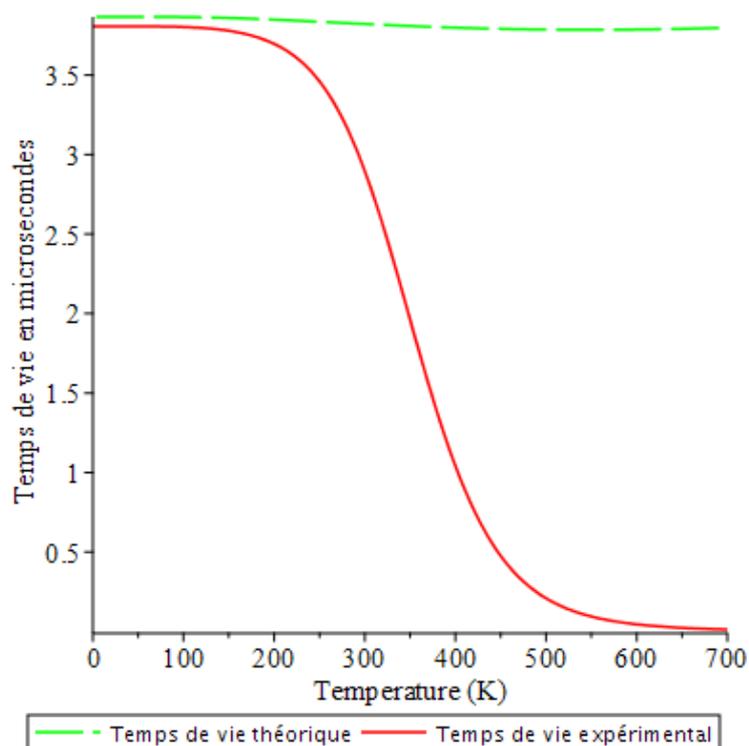


FIGURE 3.5 – Temps d’émission spontanée en fonction de la température. La courbe expérimentale est issue de la référence [18]. La courbe théorique, uniquement valide en dessous de 200 K, est tracée à partir de l’équation (3.79). Nous observons un palier en dessous de 200 K, pour lequel l’efficacité quantique est très proche de 1.

Nous constatons que le maximum des sections efficaces augmente lorsque nous abaissons la température. Notre modélisation a fourni les bons ordres de grandeur des sections efficaces, du moins pour les processus d’émission. Cela permettra, au cours de travaux postérieurs, de mener différentes études paramétriques mettant enjeu ces quantités spectroscopiques. Nous observons un décalage des maxima des sections efficaces de gain modélisées qui se produisent à 866 nm et non à 800 nm (valeur expérimentale). Nous pensons que ce désaccord est imputable à la loi $\sigma(\lambda) \propto \lambda^5 \cdot I(\lambda)$. Nous expliquons la valeur constante du temps d’émission spontanée quand la température est inférieure à une température de référence (ici 200 K).

Nous traçons enfin les courbes d’évolution du temps d’émission spontanée pour le niveau e_g en fonction de la température. La courbe expérimentale est issue de la référence [18]. La courbe théorique tracée à partir de l’équation (3.79) prédit le palier constant aux basses températures en dessous de 200 K. Cette courbe théorique, quasi-constante sur toute la plage de températures, n’est ici valide que pour ce palier.

Conclusion

L'approche utilisée nous a permis de donner des expressions du temps de fluorescence ainsi que des sections efficaces d'émission stimulée. Notre modélisation s'appuie sur une évaluation des moments dipolaires électriques résiduels. Nous rappelons dans le tableau suivant les valeurs des forces d'oscillateur parallèles à l'axe c du corindon.

$f_{ 1}$	2.5×10^{-4}	Mohapatra
$f_{ 2}$	2.64×10^{-5}	McClure
$f_{ 3}$	$\leq 2 \times 10^{-4}$	Moulton

TABLE 3.2 – Valeurs des forces d'oscillateur

Notre stratégie a consisté à utiliser une mesure expérimentale de la force d'oscillateur en absorption stimulée afin d'évaluer la valeur du moment dipolaire électrique résiduel. La connaissance de cette évaluation et la formule du temps d'émission spontanée pour une température en dessous d'une valeur de référence (ici 200 K), nous ont autorisé à évaluer la force de dipôles pour une polarisation perpendiculaire à l'axe c. Il faut néanmoins retenir qu'une mesure de ce temps d'émission spontanée est délicate. Notre approche permettrait d'aider à appréhender une telle mesure sous la réserve de pouvoir calculer les forces de dipôles si nous exploitons un modèle de champ cristallin avec une bonne précision. Le modèle "grossier" des charges ponctuelles pour ce champ cristallin ne peut constituer qu'une toute première approximation.

Sur le plan théorique, notre modélisation prouve que les formules d'électrodynamique quantique pour le temps d'émission spontanée ou celle pour l'estimation de la force d'oscillateur sont valides pour le Ti :saphir qui est ainsi un système gouverné par des moments dipolaires électriques résiduels. L'application de formules valides pour des transitions autorisées est ici possible pour des transitions qualifiées d'interdites. L'égalité théorique des valeurs de moments dipolaires électriques résiduels pour les deux processus absorption et émission a été vérifiée. Cela était un principe implicite, mais il est ici vérifié et rendu explicite.

Notre modélisation donne des valeurs tout à fait pertinentes relativement à la durée d'émission spontanée et aux intensités des sections efficaces ainsi que pour les largeurs spectrales de ces dernières. Par contre nous avons modélisé un décalage spectral de l'ensemble des courbes de 66 nm.

Nous n'avons pas pu expliquer correctement le profil spectral de la section efficace d'absorption stimulée; notre modélisation a échoué parce qu'il faudrait mener un calcul prenant en compte l'effet Jahn-Teller, chose que nous n'avons pas réalisée. C'est un vé-

ritable problème "vibronique" et l'adiabaticité des deux multiplets, fondement de notre thèse, est ici critiquable et ne peut pas s'appliquer en toute rigueur physique.

Nous rappelons l'introduction de nos deux innovations :

1. un seul jeu de paramètres de Huang-Rhys permettant des calculs par la méthode de la résolvante (les dégénérescences des niveaux d'énergie sont bien prises en compte);
2. la somme $I(E_0, S, \omega_l, T)$ qui varie très peu entre 0 K et 200 K (le caractère constant du temps d'émission spontanée en dessous d'une température de référence est expliqué et modélisé).

Nous rappelons l'équation essentielle obtenue lors de notre modélisation :

$$w = n \cdot \left\{ \frac{E_l}{E} \right\}^2 \cdot e^2 C^2 X \cdot \left[\frac{16\pi^3}{3\epsilon_0 c^3 h^4} \right] \sum_{p=0}^{\frac{E_0}{\hbar\omega_l}} W_p (E_0 - p\hbar\omega_l)^3 \quad (3.92)$$

$$\text{avec } I(E_0, S, \omega_l, T) = \sum_{p=0}^{\frac{E_0}{\hbar\omega_l}} W_p (E_0 - p\hbar\omega_l)^3.$$

X vaut quelques unités (la valeur ici atteinte est 1.8110 et est fonction de la structure électronique de l'impureté et de celle du cristal hôte. Le ratio $\left\{ \frac{E_l}{E} \right\}^2$ compte la correction locale de l'électrodynamique de la matière (E désigne le champ électrique incident et E_l le champ local).

Cette équation est valable pour une large classe de matériaux tels que des ions métal-transition dans des matrices hôtes diélectriques. Nous pensons aussi l'étendre à des ions terres-rares dans ces mêmes matrices hôtes.

Dans de futurs travaux, nous prendrons en compte le recouvrement des fonctions d'onde entre l'ion impureté et les ligands. Nous serions alors en mesure d'affiner notre approche avec le modèle d'"échange" qui évalue d'une meilleure façon les paramètres du champ cristallin. Cela aura pour résultat de modifier la valeur de X. Nous dépasserons alors le simple modèle à base de charges ponctuelles qui est réputé être une procédure assez "grossière". Mais nous continuons à penser que X n'aura pour valeurs que quelques unités.

La modélisation fine de l'interaction entre les impuretés en ion titane pour les très fortes concentrations sera menée lors de travaux postérieurs à ce travail de thèse. Nous

ne faisons qu'entamer cette thématique importante.

Nous concluons ici le chapitre ayant trait aux modélisations simples et analytiques de la spectroscopie quantitative du Ti :saphir en affirmant que nous essaierons de mettre en pratique notre démarche à d'autres matériaux laser.

Glossaire pour le chapitre (3)

- A** Opérateur vecteur potentiel
- \mathcal{A} Projecteur antisymétriseur
- $a_{\mathbf{k}\lambda}$ Opérateur d'annihilation du mode (\mathbf{k}, λ)
- $a_{\mathbf{k}\lambda}^\dagger$ Opérateur de création du mode (\mathbf{k}, λ)
- B** Opérateur champ magnétique
- c Célérité de la lumière
- C_3 Groupe cyclique
- e Charge de l'électron avec le signe -
- $\mathbf{e}_\lambda(\mathbf{k})$ Vecteur unitaire selon la polarisation du mode (\mathbf{k}, λ)
- E_0 Énergie à zéro phonon
- E_{fin} Énergie de l'état final
- E_{in} Énergie de l'état initial
- f Force d'oscillateur
- $F(\nu)$ Forme spectrale à la fréquence ν
- \mathcal{F} Espace de Fock pour les photons
- h Constante de Planck
- \hbar Constante de Planck réduite
- H** Hamiltonien
- \hat{H} Hamiltonien obtenu après un changement de représentation
- $\mathcal{H}_{\text{électrons}}$ Espace de Hilbert pour les électrons
- \mathbf{k} Vecteur d'onde
- k Constante de Boltzmann
- L** Côté de la boîte cubique
- L** Opérateur moment orbital total de l'ion titane
- m Masse de l'électron
- M** Élément de matrice de l'opérateur moment dipolaire électrique entre un couple d'états
- n Nombre d'électrons dans l'ion titane (aux sections (3.1) et (3.2))
- n Indice de réfraction moyen du Ti :saphir aux autres sections
- \bar{n} Moyenne thermique du nombre quantique vibrationnel
- p Nombre de phonons
- P** Opérateur moment dipolaire électrique total de l'ion titane ou bien du seul élec-

- tron $3d^1$
- \mathbf{P}_{if} Élément de matrice de l'opérateur moment dipolaire électrique entre les états initial et final
- P Polarisation du milieu
- \mathbf{R} Opérateur vecteur position
- $\mathbf{R}_{V''}^V$ Somme des forces de dipôle
- S Facteur de Huang-Rhys (description du couplage électron-phonon)
- T Température en Kelvin
- V Opérateur agissant sur le vecteur d'état et effectuant un changement de représentation
- V_c Potentiel du champ cristallin agissant sur l'ion titane
- V_e Volume de l'échantillon
- W_p Paramètre de Franck-Condon
- X Coordonnées générales pour les déplacements des noyaux (uniquement à la section (3.5.1))
- X Facteur inconnu comme noté dans le reste du chapitre
- Γ Représentation irréductible
- ϵ_0 Permittivité du vide
- ϵ_r Permittivité relative du matériau
- κ Temps d'émission spontanée du niveau e_g
- λ Indice notant une polarisation transverse au vecteur d'onde dans les sections (3.1) et (3.2)
- λ Longueur d'onde de la lumière dans les sections (3.5), (3.6) et (3.7)
- ν Fréquence de la lumière absorbée ou émise
- σ Section efficace
- σ_{\parallel} Section efficace selon l'axe c du corindon pour l'absorption stimulée
- σ_{π} Section efficace selon l'axe c du corindon pour l'émission stimulée
- $\omega(\mathbf{k})$ Pulsation associée au mode de vecteur d'onde \mathbf{k}
- ω_l Pulsation du phonon effectif pour la théorie de Huang-Rhys
- $d\Omega$ Élément différentiel de l'angle solide
- $|fin\rangle$ Ket pour l'état final
- $|in\rangle$ Ket pour l'état initial

Chapitre 4

Modélisations de l'indice de réfraction

Sommaire

4.1 L'indice de réfraction modélisé	74
4.1.1 Un système à quatre niveaux : ses hypothèses	74
4.1.2 Mise en équations	75
4.1.3 Résolution du système des équations de cohérence	77
4.2 Une piste théorique à approfondir	80
4.2.1 Présentation de la modélisation	80
4.2.2 L'équation de base	84
4.2.3 Que faire pour résoudre cette équation?	85
4.3 Un système totalement quantifié; quel est son Lagrangien?	85

La détermination de l'indice de réfraction du Ti :saphir en fonction de la concentration de dopant titane est un point qui peut être particulièrement important à connaître parce que cela peut avoir un impact sur la dispersion de la vitesse de groupe et donc sur la compression de l'impulsion en fin de chaîne laser. Cette détermination est un problème difficile qui, pour beaucoup, justifie le présent travail de thèse. Nous proposons une modélisation basée sur un système à quatre niveaux : deux niveaux électroniques et lorsque nous tenons compte de la "vibronique" du système, nous dédoublons ceux-ci. Une simple relation de Lorentz nous donnera l'expression de l'indice en fonction des polarisabilités des constituants. Cet indice sera donc exprimé en facteurs constitués des produits- la concentration multipliée par la polarisabilité du constituant. Il restera à confronter notre formule de l'indice de réfraction à ses valeurs expérimentales.

Dans une seconde approche, restée infructueuse pour le moment, nous avons considéré l'Hamiltonien du système « moléculaire » : un ion titane entouré d'une coordination de six ions oxygène pour une symétrie approchée qualifiée d'octaédrique. Nous posons

alors une équation de Poisson pour le vecteur potentiel. Cela produit alors une équation intégral-différentielle que nous ne savons pas résoudre en l'état. En outre, l'application numérique ne peut être menée jusqu'au bout en raison de la méconnaissance des valeurs de nombreux facteurs intervenant dans une telle formulation.

Finalement, nous évaluons le Lagrangien d'un système totalement quantifié (électrons+modes de vibrations de la "molécule"+photons). Ce Lagrangien pourrait entrer dans la formulation d'intégrales fonctionnelles exploitables au cours du calcul d'éléments de matrice $\langle fin, t > 0 | ini, t = 0 \rangle$.

Ce chapitre, pour ses sections (4.2) et (4.3), demeure à l'état d'esquisse et nécessitera des travaux postérieurs.

4.1 L'indice de réfraction modélisé

Le problème de l'indice de réfraction du Ti :saphir est traité dans le cadre d'un diagramme à quatre niveaux d'énergie. Nous avons su inclure le facteur concentration de dopant titane dans une formule pour cet indice. Ce traitement constitue une seconde tentative pour la prise en compte des interactions entre les impuretés de titane. Celui-ci est donc novateur.

4.1.1 Un système à quatre niveaux : ses hypothèses

Nous supposons que la polarisabilité de l'ion Ti^{3+} est isotropique. Nous calculons un indice de réfraction, dû à la concentration d'ions titane, indépendant de la direction. Aussi, nous n'expliquerons pas la biréfringence du saphir dopé au titane.

Nous considérons un système à quatre niveaux chacun non-dégénéré. Les kets $|a\rangle$ et $|b\rangle$ sont associés au même état électronique e_g mais le second correspond à zéro phonon. Nous avons une transition non-radiative de durée pico-secondes entre ces états gouvernée par la fréquence Γ_{ba} . De même, les kets $|c\rangle$ et $|d\rangle$ sont associés au même état électronique t_{2g} mais le second correspond à zéro phonon. Nous avons aussi une transition non-radiative de durée pico-secondes entre ces états gouvernée par la fréquence Γ_{dc} .

Nous adoptons une méthode semi-classique. La matière aura une description "quantifiée" et le champ électromagnétique sera traduit par une variable classique dépendante du temps. L'Hamiltonien non perturbé s'évalue :

$$H_0 = \sum_i \hbar\omega_i |i\rangle\langle i| \quad (4.1)$$

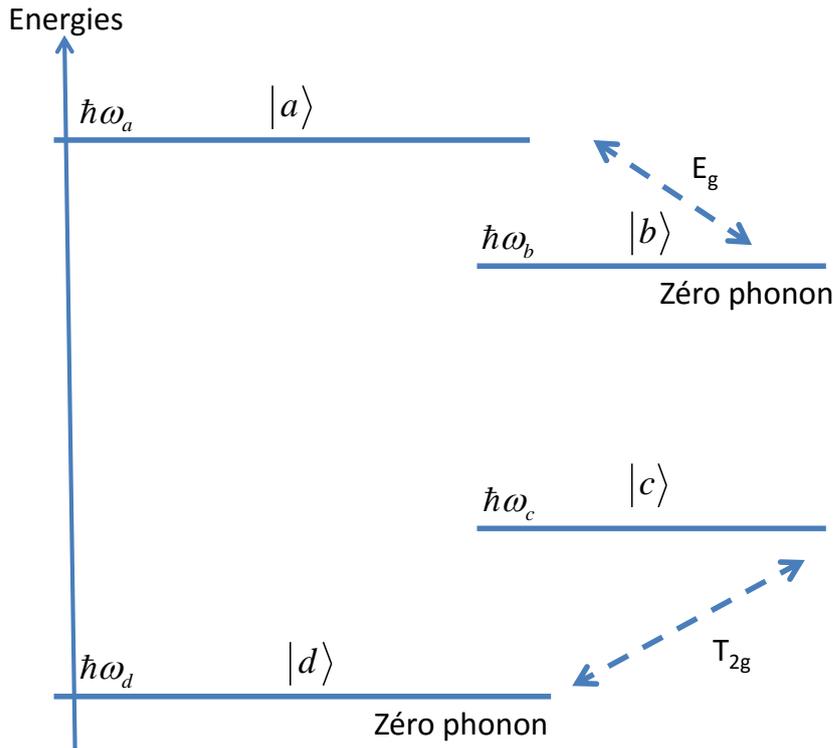


FIGURE 4.1 – Energies du système à quatre niveaux.

Nous supposons une transition dipolaire électrique résiduelle comme introduite dans le chapitre (3) ; nous introduisons ainsi un mode de champ électromagnétique qui nous permettra de révéler les propriétés de susceptibilité électrique du matériau. L'Hamiltonien dipolaire électrique s'exprime comme suit :

$$H_1 = -\frac{\hbar}{2} \frac{p_{ad}}{\hbar} E(t) \cdot e^{-i\nu t} |a\rangle\langle d| - \frac{\hbar}{2} \frac{p_{bc}}{\hbar} E(t) \cdot e^{-i\nu t} |b\rangle\langle c| + c.c \quad (4.2)$$

c.c indique une expression complexe conjuguée. p_{ad} et p_{bc} désignent les éléments de matrice de l'opérateur moment dipolaire électrique entre les niveaux $|a\rangle$, $|d\rangle$ et $|b\rangle$, $|c\rangle$. Suivant le principe de Franck-Condon, nous estimons que ces deux éléments de matrice sont égaux lors des calculs finaux (en fait, ils correspondent à des éléments de matrice égaux lorsque les déplacements des noyaux sont nuls).

4.1.2 Mise en équations

Dans l'ouvrage de R.W. Boyd [38], les équations générales d'évolution pour les éléments de matrice de l'opérateur matrice densité sont les suivantes (une partie cohérente + les expressions de pompage et de relaxation- les notations sont propres au présent cha-

pitre et conformes à la référence) :

$$\frac{d\rho_{nm}}{dt} = -i\hbar^{-1} [\mathbf{H}, \rho]_{nm} - \gamma_{nm}\rho_{nm}, \quad n \neq m \quad (4.3)$$

$$\frac{d\rho_{nn}}{dt} = -i\hbar^{-1} [\mathbf{H}, \rho]_{nn} + \sum_{E_m > E_n} \Gamma_{nm}\rho_{mm} - \sum_{E_m < E_n} \Gamma_{mn}\rho_{nn} \quad (4.4)$$

Γ_{nm} décrit la fréquence de décroissance de la population du niveau m vers le niveau n . γ_{nm} indique le taux d'amortissement (exprimé en fréquence) de la cohérence ρ_{nm} . Ce taux d'amortissement s'exprime sous des conditions tout à fait générales par la relation :

$$\gamma_{nm} = \frac{1}{2} (\Gamma_n + \Gamma_m) + \gamma_{nm}^{(col)} \quad (4.5)$$

Γ_n et Γ_m dénotent les taux de décroissances complets de population des niveaux respectifs n et m . En notations relatives à l'équation (4.3), Γ_n est donnée par la formule :

$$\Gamma_n = \sum_{n' (E_{n'} < E_n)} \Gamma_{n'n} \quad (4.6)$$

$\gamma_{nm}^{(col)}$ représente le taux de déphasage du dipôle dû à des processus qui ne sont pas associés à des transferts de populations.

$$\begin{aligned} & [\mathbf{H}_0, \rho]_{ad} \\ & (\mathbf{H}_0\rho)_{ad} - (\rho\mathbf{H}_0)_{ad} \\ & \sum_{\nu} \mathbf{H}_{0a\nu}\rho_{\nu d} - \sum_{\nu} \rho_{a\nu}\mathbf{H}_{0\nu d} \\ & \mathbf{H}_{0aa}\rho_{ad} - \rho_{ad}\mathbf{H}_{0dd} \\ & \hbar\rho_{ad}(\omega_a - \omega_d) \\ & \hbar\rho_{ad}\omega_{ad} \end{aligned}$$

De même, nous calculons le commutateur $[\mathbf{H}_1, \rho]_{ad}$:

$$\begin{aligned} & [\mathbf{H}_1, \rho]_{ad} \\ & (\mathbf{H}_1\rho)_{ad} - (\rho\mathbf{H}_1)_{ad} \\ & \sum_{\nu} \mathbf{H}_{1a\nu}\rho_{\nu d} - \sum_{\nu} \rho_{a\nu}\mathbf{H}_{1\nu d} \\ & -\frac{1}{2}p_{ad}E(t)e^{-i\nu t}\rho_{dd} + \frac{1}{2}p_{ad}E(t)e^{-i\nu t}\rho_{aa} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& -i\hbar^{-1} [H_0 + H_1, \rho]_{ad} - \gamma_{ad}\rho_{ad} \\
& = -i\rho_{ad}\omega_{ad} - \frac{i}{2\hbar} p_{ad} E(t) e^{-i\nu t} (\rho_{aa} - \rho_{dd}) - \gamma_{ad}\rho_{ad}
\end{aligned}$$

Nous obtenons une première équation de cohérence :

$$\frac{d\rho_{ad}}{dt} = -(i\omega_{ad} + \gamma_{ad})\rho_{ad} - \frac{i}{2\hbar} p_{ad} E(t) e^{-i\nu t} (\rho_{aa} - \rho_{dd}) \quad (4.7)$$

En menant un calcul analogue, nous posons une seconde équation de cohérence :

$$\frac{d\rho_{bc}}{dt} = -(i\omega_{bc} + \gamma_{bc})\rho_{bc} - \frac{i}{2\hbar} p_{bc} E(t) e^{-i\nu t} (\rho_{bb} - \rho_{cc}) \quad (4.8)$$

Les deux différences de populations $(\rho_{aa} - \rho_{dd})$ et $(\rho_{bb} - \rho_{cc})$, lorsque le régime stationnaire est atteint, prennent des valeurs d'équilibre (équilibre entre la dynamique et les processus de pertes, de pompage et de relaxation) notées respectivement N_{ad} et N_{bc} . La population de l'état $|d\rangle$ est surabondante et N_{ad} est assimilée à une constante lorsque la concentration de dopant évolue (nous retenons le terme constant d'un développement limité -que nous ne réalisons pas- en la variable la concentration de dopant). Le caractère constant de N_{bc} avec les évolutions de la concentration de dopant est plus difficile à justifier. Nous en faisons la supposition, mais nous sommes conscient que c'est là une difficulté non résolue de notre approche.

4.1.3 Résolution du système des équations de cohérence

Nous sommes uniquement concerné par une théorie linéaire aussi nous obtenons :

$$\rho_{ad} = -\frac{i}{2\hbar} \int_{-\infty}^t dt_0 e^{-(i\omega_{ad} + \gamma_{ad})(t-t_0)} E(t_0) e^{-i\nu t_0} p_{ad} N_{ad} \quad (4.9)$$

Nous supposons que $E(t)$ est une fonction du temps variant lentement durant le temps de vie atomique; nous pouvons remplacer $E(t_0)$ par $E(t)$ dans l'équation (4.9) et nous menons finalement l'intégration :

$$\rho_{ad} = -\frac{i}{2\hbar} \frac{E(t) e^{-i\nu t}}{\gamma_{ad} + i(\omega_{ad} - \nu)} p_{ad} N_{ad} \quad (4.10)$$

A partir de la seconde équation de cohérence (4.8), de la même manière, nous obtenons :

$$\rho_{bc} = -\frac{i}{2\hbar} \frac{E(t)e^{-i\nu t}}{\gamma_{bc} + i(\omega_{bc} - \nu)} p_{bc} N_{bc} \quad (4.11)$$

Conformément à la référence [39], la polarisation s'évalue comme suit (N désigne la concentration de dopant Ti^{3+}) :

$$\mathcal{P} = 2N \left\{ e^{i\nu t} [p_{da}\rho_{ad}(t) + p_{cb}\rho_{bc}(t)] \right\} \quad (4.12)$$

Nous définissons la susceptibilité χ comme une constante de proportionnalité reliant \mathcal{P} à $E(t)$ (en régime linéaire, pour de faibles intensités du champ électrique) :

$$\mathcal{P} = \epsilon_0 \chi E(t) \quad (4.13)$$

Nous obtenons la formulation suivante pour la polarisabilité ζ de l'ion Ti^{3+} . Nous ne prenons pas en compte, à cette étape, la correction due à l'électrodynamique de la matière : nous faisons la confusion entre champs incident et local.

$$\zeta = -\frac{i}{\hbar\epsilon_0} \left(\frac{|p_{ad}|^2 N_{ad}}{\gamma_{ad} + i(\omega_{ad} - \nu)} + \frac{|p_{bc}|^2 N_{bc}}{\gamma_{bc} + i(\omega_{bc} - \nu)} \right) \quad (4.14)$$

Nous supposons que l'impureté ion Ti^{3+} se situe sur un nœud d'un cristal du système cubique (ce qui n'est pas rigoureusement vrai pour le cristal de saphir), nous employons alors une relation, dite de Lorentz, reliant les champs électriques incident et local selon le vecteur de polarisation. La susceptibilité électrique du saphir sans dopant est connue grâce à des expressions de dispersion à trois termes de Sellmeier pour l'indice de réfraction associé (voir [40]).

Pour le saphir pur sans dopant nous écrivons :

$$n = \sqrt{1 + \chi_e} \quad (4.15)$$

Soit la susceptibilité en fonction de l'indice :

$$\chi_e = n^2 - 1 \quad (4.16)$$

Le produit de la polarisabilité du saphir pur par la concentration d'aluminate $(C\zeta)_{saphir}$ s'exprime alors (nous supposons une relation de Lorentz ce qui constitue encore une approximation dont il faudra juger la pertinence) :

$$(C\zeta)_{saphir} = \frac{\chi_e}{1 + \frac{\chi_e}{3}} \quad (4.17)$$

Pour un milieu composé de plusieurs constituants, la susceptibilité globale se calcule en sommant les différents produits polarisabilités multipliées par les concentrations. Toujours en se plaçant dans le cadre de la relation de Lorentz, nous obtenons l'expression de la susceptibilité électrique totale χ_t comme suit :

$$\chi_t = \frac{(N\zeta + (C\zeta)_{saphir})}{1 - \frac{(N\zeta + (C\zeta)_{saphir})}{3}} \quad (4.18)$$

Cette expression est bien fonction de la concentration N du dopant ion Ti^{3+} . L'indice de réfraction total s'évalue finalement :

$$n_t = \sqrt{1 + \chi_t} = \sqrt{1 + \frac{(N\zeta + (C\zeta)_{saphir})}{1 - \frac{(N\zeta + (C\zeta)_{saphir})}{3}}} \quad (4.19)$$

Nous remplaçons dans l'équation (4.19), ζ et $(C\zeta)_{saphir}$ par leurs expressions respectives (4.14) et (4.17). Notre expression pour n_t est fonction des deux constantes N_{ad} et N_{bc} qu'il faudrait déterminer. Il restera à confronter la présente formule face à des données expérimentales comme des mesures de l'indice de réfraction du saphir dopé au titane lorsqu'on connaît les concentrations de dopant. La difficulté réside dans la mesure précise de ces concentrations. Notre approche devra susciter un travail expérimental futur à inclure dans les perspectives de la présente thèse. Nous savons cependant que l'influence de cette concentration de dopant titane se traduit par une modification de la troisième décimale de la valeur de l'indice. L'effet dont nous envisageons le traitement demeure primordial pour l'exploitation des lasers de très hautes puissances crête. Nous n'avons entrevu qu'une solution potentielle et beaucoup de travaux expérimentaux dans la maîtrise et la mesure des concentrations de dopant pour le Ti :saphir produit constitueront une réelle gageure. Nous explorons, dans la section suivante, une piste qui aurait pu fournir une relation de dispersion, intéressante quant à la compréhension de notre problème ayant trait à l'indice de réfraction en fonction de la concentration de dopant.

4.2 Une piste théorique à approfondir

Nous présentons une modélisation n'ayant pas abouti à une évaluation de l'indice de réfraction du Ti :saphir. Cependant, nous pensons qu'une telle modélisation est importante et intéressante. Elle devra nécessiter de notre part des travaux ultérieurs afin de mieux en maîtriser la compréhension. Nous donnons un état provisoire de nos réflexions. Nous ne serons pas exhaustif dans le traitement et nous renvoyons à la référence [41] pour tous les détails.

4.2.1 Présentation de la modélisation

Nous considérons le système molécule ion Ti^{3+} entouré de six O^{2-} . Nous précisons la dynamique de cette molécule et l'interaction de cette dernière avec un champ électromagnétique traité de manière classique (il s'agit encore de l'approche semi-classique). L'espace de Hilbert décrivant les électrons dont l'électron $3d^1$ et les déplacements des noyaux de cette molécule se formule :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{électron}} \otimes \mathcal{H}_{\text{modes}} \quad (4.20)$$

L'Hamiltonien du système molécule s'écrit :

$$H_{mol} = H_{mol}^{e-}(\mathbf{R}^{(0)}) \otimes 1_{modes} + 1_{\text{électrons}} \otimes H_{mol}^{modes} + H_{mol}^{rés} \quad (4.21)$$

Dans cette expression, l'opérateur $H_{mol}^{e-}(\mathbf{R}^{(0)})$ agissant sur les électrons, mais paramétré par la position à l'équilibre des noyaux $(\mathbf{R}^{(0)})$, s'évalue :

$$H_{mol}^{e-}(\mathbf{R}^{(0)}) = \sum_{v=1}^n \frac{\mathbf{p}_v^2}{2m} + \frac{1}{2} \sum_{v \neq \mu=1}^n \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \frac{1}{\|\mathbf{q}_v - \mathbf{q}_\mu\|} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_{\mu=1}^N \sum_{v=1}^n \frac{Z_\mu}{\|\mathbf{q}_v - \mathbf{R}_\mu^{(0)}\|} \quad (4.22)$$

Le premier terme définit l'énergie cinétique des électrons, le second note la répulsion coulombienne entre ces mêmes électrons et le dernier terme indique l'attraction coulombienne entre électrons et noyaux de la molécule.

H_{mol}^{modes} décrit les modes de vibrations des noyaux. Il se décompose en parties harmonique et anharmonique :

$$H_{mol}^{modes} = H_{mol}^{harm} + V_{mol}^{anharm}(Q) \quad (4.23)$$

La partie harmonique est décrite à partir de variables positions Q_α et impulsions généralisées P_α pour les modes propres α appartenant à l'ensemble \mathcal{A} . Elle se formule :

$$H_{mol}^{harm} = \sum_{\alpha \in \mathcal{A}} \frac{P_\alpha^2 + \omega_\alpha^2 M_{mol}^2 Q_\alpha^2}{2M_{mol}} \quad (4.24)$$

α indice un mode propre. ω_α est une pulsation associée à ce mode. M_{mol} désigne la masse du système moléculaire.

Finalement, le terme résiduel d'interaction entre les électrons et les noyaux s'écrit :

$$H_{mol}^{rès} = -1_{\text{électrons}} \otimes \{E_0(\mathbf{R}_.) - 1_{\text{modes}} E_0(\mathbf{R}_.^{(0)})\} - \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_{\mu=1}^N \sum_{\nu=1}^n \left\{ \frac{Z_\mu}{\|\mathbf{q}_\nu \otimes 1_{\text{modes}} - 1_{\text{électrons}} \otimes \mathbf{R}_\mu\|} - \frac{Z_\mu}{\|\mathbf{q}_\nu \otimes 1_{\text{modes}} - 1_{\text{électrons}} \otimes \mathbf{R}_\mu^{(0)}\|} \right\} \quad (4.25)$$

\mathbf{R}_μ et $\mathbf{R}_\mu^{(0)}$ sont des opérateurs position. $E_0(\mathbf{R}_.)$ désigne l'énergie de l'état électronique fondamental lorsque la position des noyaux est donnée par les vecteurs \mathbf{R}_μ . Il est alors possible de développer cet opérateur $H_{mol}^{rès}$ en série de puissances des opérateurs Q_α avec $\alpha \in \mathcal{A}$. C'est une position exprimée pour le mode propre α . Nous obtenons :

$$H_{mol}^{rès} = \sum_{\alpha \in \mathcal{A}} F_\alpha^{(1)}(\mathbf{q}_.) \otimes Q_\alpha + \frac{1}{2!} \sum_{\alpha, \beta \in \mathcal{A}} F_{\alpha\beta}^{(2)}(\mathbf{q}_.) \otimes Q_\alpha Q_\beta + \frac{1}{3!} \sum_{\alpha, \beta, \gamma \in \mathcal{A}} F_{\alpha\beta\gamma}^{(3)}(\mathbf{q}_.) \otimes Q_\alpha Q_\beta Q_\gamma + \dots \quad (4.26)$$

$\mathbf{q}_.$ dénote un opérateur position pour les électrons. Les opérateurs F sont les correspondants des coefficients de la série de Taylor du développement de $H_{mol}^{rès}$ par rapport aux opérateurs Q_α . Nous affirmons que l'opérateur décrivant le couplage électron-phonon (si nous avons à faire avec un système cristal) est noté par $H_{mol}^{e-modes}$. Nous avons les formules :

$$H_{mol}^{e-modes} = H_{mol}^{(1)e-modes} + H_{mol}^{(2)e-modes} + \dots \quad (4.27)$$

$$H_{mol}^{(1)e-modes} = \sum_{\alpha \in \mathcal{A}} F_\alpha^{(1)}(\mathbf{q}_.) \otimes Q_\alpha \quad (4.28)$$

$$H_{mol}^{(2)e-modes} = \frac{1}{2!} \sum_{\alpha, \beta \in \mathcal{A}} F_{\alpha\beta}^{(2)}(\mathbf{q}_.) \otimes Q_\alpha Q_\beta \quad (4.29)$$

Nous ne retenons que le terme d'interaction $H_{mol}^{(1)e-modes}$ et nous négligeons, en première approche, les termes non-linéaires en les positions des modes propres. Nous indiquons que les modes propres sont associés à des bosons tandis que les variables attachées aux électrons correspondent à des fermions.

Nous évaluons $H_{mol}^{e-}(\mathbf{R}^{(0)})$. Nous pouvons utiliser des méthodes d'approximation adaptées à notre système. Parmi ces méthodes, nous avons l'approche par la méthode de Hartree-Fock. Nous choisissons comme l'auteur en [41] une méthode plus simple fondée sur l'approximation du champ auto-consistant. Nous introduisons le champ auto-consistant décrit par le potentiel :

$$V_{mol}^{(a-c)}(\mathbf{x}) = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \left\{ \int_{\mathbb{R}^3} d^3\mathbf{x}' \frac{\rho_0(\mathbf{x}')}{\|\mathbf{x} - \mathbf{x}'\|} - \sum_{\mu=1}^N \frac{Z_\mu}{\|\mathbf{x} - \mathbf{R}_\mu^{(0)}\|} \right\} \quad (4.30)$$

Dans cette expression $\rho_0(\mathbf{x})$ désigne la densité électronique de l'état fondamental approché, fournie par les équations de Hartree. Nous avons alors un terme électronique résiduel. C'est l'opérateur à deux corps :

$$H_{mol}^{e-(rès)} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_{v=1}^n \left\{ \frac{1}{2} \sum_{\mu \neq v=1}^n \frac{1}{\|\mathbf{q}_v - \mathbf{q}_\mu\|} - \int_{\mathbb{R}^3} d^3\mathbf{x}' \frac{\rho_0(\mathbf{x}')}{\|\mathbf{q}_v - \mathbf{x}'\|} \right\} \quad (4.31)$$

L'opérateur à un corps exprimant l'Hamiltonien électronique auto-consistant se formule :

$$H_{mol}^{e-(a-c)} = \sum_{v=1}^n \left(\frac{\mathbf{p}_v^2}{2m} + V_{mol}^{(a-c)}(\mathbf{q}_v) \right) \quad (4.32)$$

En fait, nous réécrivons H_{mol} :

$$H_{mol} = H_{mol}^{e-(a-c)} \otimes 1_{modes} + H_{mol}^{e-(rès)} \otimes 1_{modes} + 1_{électrons} \otimes H_{mol}^{harm} + 1_{électrons} \otimes V_{mol}^{anharm} + H_{mol}^{e-modes} \quad (4.33)$$

L'action d'une onde électromagnétique extérieure sur le système est représentée par un Hamiltonien où le potentiel vecteur est classique dépendant du temps (e comprend ici le signe négatif de la charge de l'électron) :

$$H_{mol}^{ext}(t) = -e \int_{\mathbb{R}^3} \mathbf{J}(\mathbf{x}) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{x}, t) d^3\mathbf{x} \quad (4.34)$$

où $e \mathbf{J}(\mathbf{x})$ désigne l'opérateur de densité de courant électrique du système. Cet opérateur possède deux contributions : l'une issue du mouvement des électrons et l'autre due aux

modes propres (les déplacements des noyaux) :

$$\mathbf{J}(\mathbf{x}) = \mathbf{j}_{\text{électrons}}(\mathbf{x}) \otimes 1_{\text{modes}} + 1_{\text{électrons}} \otimes \mathbf{J}_{\text{modes}}(\mathbf{x}) \quad (4.35)$$

où

$$\mathbf{j}_{\text{électrons}}(\mathbf{x}) = \sum_{\nu=1}^n \frac{1}{2} \left\{ \frac{\mathbf{p}_{\nu}}{m}, \delta(\mathbf{x} 1_{\text{électrons}} - \mathbf{q}_{\nu}) \right\} \quad (4.36)$$

Les accolades notent une symétrisation des variables classiques avant de définir un nouvel opérateur hermitien.

et où

$$\mathbf{J}_{\text{modes}}(\mathbf{x}) = \sum_{\mu=1}^N \frac{Z_{\mu}}{2} \left\{ \sum_{\alpha \in \mathcal{A}} \frac{P_{\alpha}}{M_{\text{mol}}} \mathbf{X}_{\alpha\mu}, \delta \left((\mathbf{x} - \mathbf{R}_{\mu}^{(0)}) 1_{\text{modes}} - \sum_{\beta \in \mathcal{A}} Q_{\beta} \mathbf{X}_{\beta\mu} \right) \right\} \quad (4.37)$$

Les vecteurs \mathbf{X} sont attachés à la description des modes propres du système molécule.

Nous nous inspirons des méthodes du calcul des perturbations dépendantes du temps. H_{mol} indépendant du temps joue ici le rôle d'un Hamiltonien non perturbé. L'Hamiltonien d'interaction **en représentation d'interaction** s'écrit :

$$H_{\text{mol}}^{\text{ext}}(t) = -e \int_{\mathbb{R}^3} \mathbf{J}_I(\mathbf{x}, t) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{x}, t) d^3 \mathbf{x} \quad (4.38)$$

où

$$\mathbf{J}_I(\mathbf{x}, t) = \exp \left(\frac{i}{\hbar} H_{\text{mol}} t \right) \mathbf{J}(\mathbf{x}) \exp \left(-\frac{i}{\hbar} H_{\text{mol}} t \right) \quad (4.39)$$

Nous ne retenons pas la formulation de l'opérateur d'évolution en représentation d'interaction $U_I(t)$ (ce formalisme est fourni dans la référence [41]).

Nous introduisons le tenseur de susceptibilité à l'ordre n dont l'expression est la suivante :

$$\begin{aligned} \chi_{(n)}^{i_1 \dots i_n}(\mathbf{x}, t; \mathbf{x}_1, t_1; \dots; \mathbf{x}_n, t_n) &= \left(\frac{ie}{\hbar} \right)^n \sum_{k=0}^n (-1)^k \theta(t - t_1) \dots \theta(t_{k-1} - t_k) \theta(t - t_{k+1}) \dots \theta(t_{n-1} - t_n) \\ &\quad \langle \Phi_0 | J_1^{i_k}(\mathbf{x}_k, t_k) \dots J_1^{i_1}(\mathbf{x}_1, t_1) J_1(\mathbf{x}, t) J_1^{i_{k+1}}(\mathbf{x}_{k+1}, t_{k+1}) \dots J_1^{i_n}(\mathbf{x}_n, t_n) | \Phi_0 \rangle \end{aligned} \quad (4.40)$$

Le vecteur $|\Phi_0\rangle \in \mathcal{H}$ décrit l'état fondamental du système. Les fonctions θ sont de Heavi-

side. L'expression de la susceptibilité linéaire s'écrit alors :

$$\chi_1^{i_1}(\mathbf{x}, t; \mathbf{x}_1, t_1) = \left(\frac{ie}{\hbar} \right) \cdot \left(\theta(t - t_1) \langle \Phi_0 | \mathbf{J}_1(\mathbf{x}, t) \mathbf{J}_1^{i_1}(\mathbf{x}_1, t_1) | \Phi_0 \rangle - \theta(t - t_1) \langle \Phi_0 | \mathbf{J}_1^{i_1}(\mathbf{x}_1, t_1) \mathbf{J}_1(\mathbf{x}, t) | \Phi_0 \rangle \right) \quad (4.41)$$

La méconnaissance de beaucoup de valeurs numériques pour les grandeurs du présent modèle est constatée, suite à une première recherche. Il faudra, dans des travaux postérieurs, mener un approfondissement et une recherche méticuleuse de ces valeurs. Néanmoins, nous pouvons poser "l'équation de base" pour notre problème en la variable le potentiel vecteur.

4.2.2 L'équation de base

En choisissant la jauge de Lorentz et en utilisant l'opérateur d'Alembertien, nous obtenons la relation locale dite équation de Poisson (voir [42]) :

$$\square \mathbf{A} + \mu_0 \mathbf{j} = 0 \quad (4.42)$$

L'expression de la valeur moyenne de la densité de courant induit en fonction du potentiel vecteur du champ électromagnétique extérieur, à l'ordre n, s'écrit :

$$\mathbf{j}_{(n)}(\mathbf{x}, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt_1 \int_{\mathcal{R}^3} d^3 \mathbf{x}_1 \sum_{i_1=1}^3 \dots \int_{-\infty}^{+\infty} dt_n \int_{\mathcal{R}^3} d^3 \mathbf{x}_n \sum_{i_n=1}^3 \chi_{(n)}^{i_1 \dots i_n}(\mathbf{x}, t; \mathbf{x}_1, t_1; \dots; \mathbf{x}_n, t_n) A_{i_1}(\mathbf{x}_1, t_1) \dots A_{i_n}(\mathbf{x}_n, t_n) \quad (4.43)$$

A l'ordre 1 (linéarité), nous posons :

$$\mathbf{j}_{(1)}(\mathbf{x}, t) = \int_{-\infty}^{+\infty} dt_1 \int_{\mathcal{R}^3} d^3 \mathbf{x}_1 \sum_{i_1=1}^3 \chi_{(1)}^{i_1}(\mathbf{x}, t; \mathbf{x}_1, t_1) A_{i_1}(\mathbf{x}_1, t_1) \quad (4.44)$$

Nous obtenons, à l'ordre 1, une équation intégral-différentielle de la forme :

$$\begin{aligned} \square \mathbf{A} + \mu_0 \mathbf{j}_{(1)} &= 0 \\ \square \mathbf{A}(\mathbf{x}, t) &= -\mu_0 \int_{-\infty}^{+\infty} dt_1 \int_{\mathcal{R}^3} d^3 \mathbf{x}_1 \sum_{i_1=1}^3 \chi_{(1)}^{i_1}(\mathbf{x}, t; \mathbf{x}_1, t_1) A_{i_1}(\mathbf{x}_1, t_1) \end{aligned} \quad (4.45)$$

La résolution d'une telle équation auto-consistante fournirait une condition sur la susceptibilité linéaire et nous donnerait alors des renseignements sur l'indice de réfraction de notre matériau (des renseignements ayant trait à une relation de dispersion).

4.2.3 Que faire pour résoudre cette équation?

En passant dans l'espace de Fourier pour le temps (et peut-être pour la variable d'espace), nous simplifions notre équation qui d'intégré devient algébrique et différentielle. Nous divisons ensuite l'équation (4.45) par la variable vecteur potentiel (qui est différente de zéro), ce qui permet d'explicitier une équation différentielle sur la susceptibilité (ici à l'ordre 1 ou bien à un ordre supérieur). Une réduction du noyau intégral et/ou l'application de méthodes perturbatives devraient également permettre la résolution d'une telle équation. Une perspective d'étude ultérieure est évidemment envisagée.

4.3 Un système totalement quantifié; quel est son Lagrangien?

Dans la précédente section, nous avons introduit un espace de Hilbert produit tensoriel des variables électroniques et des modes propres de vibration des noyaux de la molécule système. Le champ électromagnétique était traité de façon classique par une fonction complexe dépendant du temps. L'idée ici est de considérer l'ultime espace de Hilbert $\mathcal{H}' = \mathcal{H}_{\text{électrons}} \otimes \mathcal{H}_{\text{modes}} \otimes \mathcal{H}_{\text{photons}}$. Nous pourrions donc procéder à une quantification du champ électromagnétique telle que déjà réalisée dans le chapitre (2) de cet exposé.

Nous exposons sommairement la méthode de détermination du Lagrangien du système [molécule+ champ électromagnétique quantifié]. Nous n'avons pas ici la prétention de fournir une formule quantitative mais nous cherchons plutôt une méthode permettant de dresser un tel Lagrangien.

Nous approchons l'Hamiltonien "non-perturbé" du système (électrons + modes propres de la molécule) :

$$H_{mol}^{app} = H_{mol}^{e-(a-c)} + H_{mol}^{harm} + H_{mol}^{(1)e-modes} \quad (4.46)$$

La partie de cet Hamiltonien $H_{mol}^{(1)e-modes}$ n'est pas fonction des variables $\dot{\mathbf{q}}$ et \dot{Q}_α . Une transformation "inverse" de Legendre donnerait, pour le Lagrangien associé aux électrons et aux modes propres de vibrations, la formule :

$$L_{mol}^{app} = \frac{1}{2} \sum_{v=1}^n m \dot{\mathbf{q}}_v^2 + \frac{1}{2} \sum_{\alpha \in \mathcal{A}} M_{mol} \dot{Q}_\alpha^2 - \sum_{v=1}^n V_{mol}^{(a-c)}(\mathbf{q}_v) - \sum_{\alpha \in \mathcal{A}} \frac{1}{2} \omega_\alpha^2 M_{mol} Q_\alpha^2 - H_{mol}^{(1)e-modes} \quad (4.47)$$

Nous suivons la méthode de la section (2.1.6.). Nous incluons un Lagrangien décrivant le champ libre de radiation des photons dénommé L_{rad} . Enfin, au Lagrangien total, nous ra-

joutons le Lagrangien dit d'interaction entre le champ électromagnétique et la molécule. Cette interaction peut être, par exemple, décrite par :

$$L_{int} = e \int \mathbf{J}(\mathbf{x}) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{x}) d^3 \mathbf{x} \quad (4.48)$$

Ainsi dans le chapitre (2), nous avons la même formule. Cependant nous avons considéré la densité de courant *transverse*. $\mathbf{A}(\mathbf{x})$ est exprimé en fonction des opérateurs de création et d'annihilation de modes de photons. Le Lagrangien de notre système totalement quantifié est alors :

$$L_{total}(\mathbf{q}, \dot{\mathbf{q}}, Q, \dot{Q}, \mathbf{A}, \dot{\mathbf{A}}) = L_{mol}^{app} + L_{rad} + L_{int} \quad (4.49)$$

La connaissance du Lagrangien total autorisera l'introduction d'intégrales fonctionnelles, correctement exprimées grâce à L_{total} , permettant d'évaluer les fonctions de transformation ou les éléments de matrice de l'opérateur unitaire d'évolution. A ce stade de nos réflexions, nous n'avons fait qu'envisager l'emploi de ce formalisme pour mener des calculs sur notre système totalement quantifié.

Conclusion

Nous venons de déterminer une formule pour l'indice de réfraction total du Ti :saphir en fonction de la concentration de dopant. Cette formulation devra être confrontée à des données expérimentales afin d'étayer sa validité. Néanmoins, nous précisons que la mesure de la concentration du dopant dans des échantillons de Ti :saphir demeure un problème délicat, aussi ces données sont difficiles à produire. Cette confrontation sera donc à réaliser avec beaucoup de dextérité. Nous avons correctement répondu, au moins partiellement, à l'un des objectifs qui avaient motivé la présente thèse.

Une autre piste théorique envisagée, reposant sur l'équation de Poisson pour le vecteur potentiel, est bien pertinente. Lorsque nous aurons divisé par la valeur de l'amplitude de ce vecteur, peut-être trouverons-nous une relation de « dispersion » apportant des informations précieuses sur les phénomènes optiques d'intérêt. Cette piste reste à approfondir et les différentes méthodes de résolution d'équations intégral-différentielles devront être scrupuleusement scrutées.

Nous avons abordé un autre point de notre travail qui est resté à l'état embryonnaire. Ainsi, nous avons déterminé le Lagrangien d'un système totalement quantifié. Dans des travaux postérieurs, nous appliquerons le schéma de quantification tel que donné dans le

chapitre sur les outils (2). Nous justifions, a posteriori, l'intérêt de partir d'un Lagrangien pour mener une quantification de notre système. Nous pensons pouvoir appliquer le formalisme de la théorie quantique des champs (en particulier l'intégrale de chemin) pour le calcul de fonctions de transformation. En outre, l'évaluation des éléments de matrice de l'opérateur unitaire d'évolution serait alors possible.

Nous concluons que nous pensons avoir tiré le maximum de la spectroscopie quantitative pour une symétrie approchée du site du cation qualifiée d'octaédrique – configuration à deux niveaux électroniques d'énergie ou à quatre niveaux lors de la prise en compte des phénomènes vibroniques. Nous allons approfondir notre intérêt sur la spectroscopie pour une symétrie réelle du site du cation dénommée trigonale ou configuration à trois niveaux électroniques d'énergie.

Glossaire pour le chapitre (4)

A Vecteur potentiel

\mathcal{A} Note dans ce chapitre l'ensemble des modes propres de vibration

e Charge de l'électron avec son signe -

$E(t)$ Champ électrique dépendant du temps

E_n Énergie du niveau n ou du ket propre $|n\rangle$

\hbar Constante de Planck réduite

H Hamiltonien

$\mathcal{H}_{\text{électrons}}$ Espace de Hilbert des électrons

$\mathcal{H}_{\text{modes}}$ Espace de Hilbert des modes de vibration de la molécule

$\mathcal{H}_{\text{photons}}$ Espace de Fock des photons

\mathbf{j} Vecteur densité de courants

n Indice de réfraction (section (4.1))

n Nombre d'électrons pour les sections (4.2) et (4.3)

N Concentration du dopant titane (section (4.1))

N Nombre de noyaux pour les sections (4.2) et (4.3)

\mathbf{p}_v Opérateur quantité de mouvement de l'électron v

\mathcal{P} Polarisation du milieu

\mathbf{q}_v Opérateur vecteur position de l'électron v

\mathbf{R}_μ Opérateur vecteur position pour le noyau de la molécule indicé par μ

$\mathbf{R}_\mu^{(0)}$ Opérateur vecteur position pour le noyau de la molécule indicé par μ pris à l'équilibre

Z_μ Numéro atomique de l'atome μ du système moléculaire

α Indice pour les modes de vibration

ϵ_0 Permittivité du vide

ζ Polarisabilité isotropique de l'ion titane

θ Fonction de Heaviside

ν Pulsation du champ électrique

ρ_{nm} Élément de matrice de l'opérateur matrice densité entre le bra $\langle n|$ et le ket $|m\rangle$

ω_{ad} Différence $\omega_a - \omega_d$

ω_{bc} Différence $\omega_b - \omega_c$

Chapitre 5

Le système laser à deux niveaux

Sommaire

5.1 Deux niveaux interagissent avec un champ électrique	90
5.1.1 Définition de la pulsation de Rabi	90
5.1.2 Systèmes d'équations de Bloch et leurs solutions	93
5.2 Équations du laser à deux niveaux; selon H. Haken	95
5.2.1 Equations de la matière	95
5.2.2 Equation pour le champ électrique total	99
5.2.3 Application de l'approximation séculaire	102
5.2.4 Application de l'approximation de l'amplitude variant lentement .	103
5.3 Le seuil laser au moyen d'une équation séculaire	105
5.4 Seuil d'un laser à deux niveaux selon Scully et al.	107
5.4.1 Système d'équations pour la matrice de population	107
5.4.2 Résolution du système pour la matrice population : une équation de van der Pol	109
5.5 L'approche totalement quantique	112
5.5.1 Les équations du laser à deux niveaux revisitées	112
5.5.2 Le seuil laser revisité par une approche totalement quantique . . .	116

Lors de la mise en place des outils théoriques et leur application aux calculs précédents, un aspect innovant nous a apparu intéressant à considérer tout d'abord d'un point de vue théorique mais aussi d'un point de vue expérimental. Il s'agit de ce que nous nommons « système laser à 2 niveaux électroniques ». Pour un matériau laser tel que le Ti :saphir, nous examinons un système à quatre niveaux comptant deux niveaux électroniques dédoublés par les phénomènes vibroniques. Nous présentons la dérivation soignée des

équations du laser à état solide parce qu'elle sera reproduite au chapitre (6) qui traitera d'un système à trois niveaux électroniques. Pour les deux cas – un système décrit soit selon la théorie semi-classique soit selon celle qualifiée de totalement quantique – nous établissons les conditions de seuil de l'effet laser. Ces conditions comparent l'inversion totale non-saturée (qui est à rapprocher de la puissance de pompage) aux pertes de la cavité, aux taux de déphasage ou de relaxation des moments dipolaires électriques et à des constantes de couplage définies à partir des éléments de matrice de ces moments.

Ce chapitre est sans nouvel apport de notre part sinon la bonne démonstration de la concordance des conditions de seuil de l'effet laser déterminées par différents calculs et méthodes (selon H.Haken dans les paradigmes semi-classique ou totalement quantique et selon Scully et al. pour le cas semi-classique).

Les quatre premières sections exploitent le paradigme dit semi-classique. La dernière section utilise le cadre d'un traitement totalement quantique.

L'approche semi-classique est menée sur un système matériel quantifié et un champ électromagnétique manipulé comme une variable classique dépendante du temps. Elle permet entre autres l'établissement des conditions de seuil pour l'effet laser. C'est ce problème qui a été traité.

5.1 Deux niveaux interagissent avec un champ électrique

5.1.1 Définition de la pulsation de Rabi

Nous considérons un champ électrique monomode. La pulsation de Rabi est une grandeur fondamentale que nous retrouverons au chapitre (6) dans un nouveau contexte. La matrice de l'opérateur densité d'un système à deux niveaux est carré de rang deux. Elle est Hermitienne, aussi nous devons à priori prendre en compte trois variables. Cependant nous savons que la trace de cette matrice vaut 1 : c'est la traduction du caractère normé à 1 du vecteur d'état pur associé à la matière décrite par ce système à deux niveaux. Il suffit donc de manipuler deux variables pour "les équations de la matière". Ces variables sont la cohérence entre les deux niveaux (un nombre complexe) et une inversion de populations (un nombre réel). Nous rappelons brièvement la méthode de l'amplitude de probabilité décrite selon le point de vue de Schrödinger.

L'Hamiltonien du système se décompose comme suit :

$$H = H_0 + H_1 \quad (5.1)$$

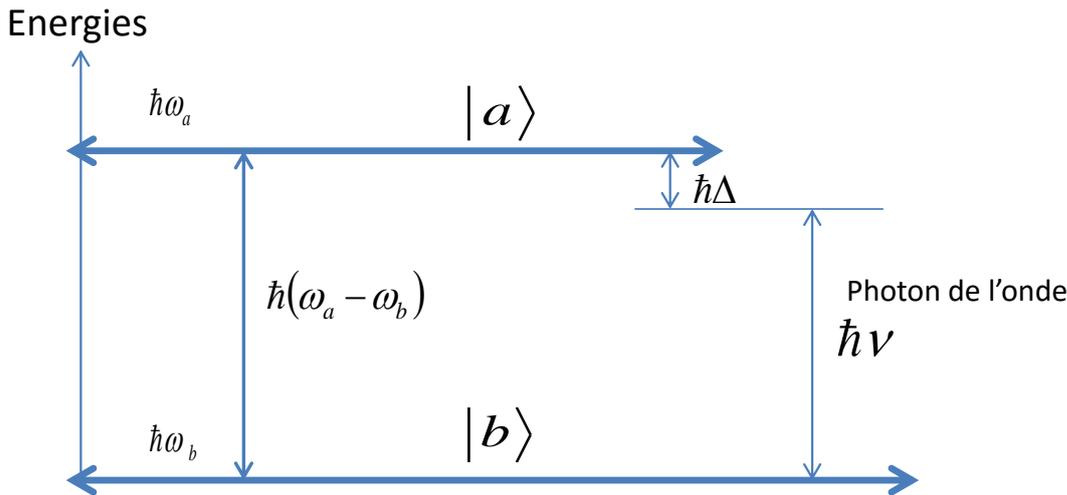


FIGURE 5.1 – Energies du système à deux niveaux.

H_0 désigne l'Hamiltonien non perturbé. Nous supposons le problème de cet Hamiltonien résolu ; cela signifie que nous connaissons son spectre et les vecteurs propres associés. Nous considérons que les niveaux d'énergie sont non-dégénérés et mis en correspondance avec les kets propres $|a\rangle$ et $|b\rangle$. Le ket $|a\rangle$ correspondra au niveau de plus grande énergie. Ces kets représentant des états stationnaires de l'énergie ; ils sont indépendants du temps.

H_1 désigne l'Hamiltonien d'interaction. Nous utilisons l'approximation du moment dipolaire électrique. Pour notre étude, cela a toujours du sens étant donné que nous avons exploité cette approximation mais en considérant un moment dipolaire électrique dit résiduel bien plus faible que ceux des transitions radiatives autorisées. Typiquement, les transitions dites autorisées ont des moments dipolaires de l'ordre de l'unité en Debye. Notre modélisation nous a fourni la valeur de 0.228 D soit environ 4 fois moins que celles des transitions autorisées. L'approximation dipolaire signifie que la longueur d'onde du rayonnement interagissant avec l'atome à deux niveaux est bien plus grande que les dimensions de cette atome. Aussi, le champ électrique sera indépendant de la coordonnée spatiale ; ce champ sera déterminé à la position de l'atome.

Nous avons les équations aux valeurs propres pour H_0 :

$$H_0|a\rangle = \hbar\omega_a|a\rangle \quad H_0|b\rangle = \hbar\omega_b|b\rangle \quad (5.2)$$

H_0 étant une observable, ses deux états propres forment une base de l'espace des états quantiques. Cela se traduit par une relation de fermeture ou de complétude $|a\rangle\langle a| +$

$|b\rangle\langle b| = 1$. Nous calculons :

$$H_0 = \hbar\omega_a|a\rangle\langle a| + \hbar\omega_b|b\rangle\langle b| \quad (5.3)$$

H_1 s'évalue comme suit :

$$H_1 = e \mathbf{R} \cdot \mathbf{E}(t) \quad (5.4)$$

où \mathbf{R} désigne l'opérateur vecteur position qui selon le point de vue de Schrödinger est indépendant du temps. Dans ce chapitre, e note la charge de l'électron sans son signe : e est une constante positive. Le champ électrique est traité comme une variable classique ; il peut dépendre du temps. Nous spécialisons cet Hamiltonien selon l'axe de coordonnée x soit $H_1 = e X \cdot E(t)$. Nous définissons $p_{ab} = -e\langle a|X|b\rangle = p_{ba}^*$. L'Hamiltonien H_1 prend la forme :

$$H_1 = (p_{ab}|a\rangle\langle b| + p_{ba}|b\rangle\langle a|) \cdot E(t) \quad (5.5)$$

Nous avons supposé que le champ électrique était polarisé linéairement le long de l'axe des x et avait pour expression :

$$E(t) = \mathcal{E} \cdot \cos(\nu t) \quad (5.6)$$

où \mathcal{E} désigne l'amplitude réelle du champ et $\nu = ck$ sa pulsation.

Le vecteur d'état, dépendant du temps, a pour expression générale :

$$|\psi(t)\rangle = C_a(t)|a\rangle + C_b(t)|b\rangle \quad (5.7)$$

L'équation fondamentale de Schrödinger est la suivante :

$$i\hbar\dot{|\psi(t)\rangle} = H|\psi(t)\rangle \quad (5.8)$$

D'où nous obtenons :

$$\dot{C}_a|a\rangle + \dot{C}_b|b\rangle = -i\omega_a C_a|a\rangle - i\omega_b C_b|b\rangle - \frac{i}{\hbar} \{p_{ab}E(t)C_b|a\rangle + p_{ba}E(t)C_a|b\rangle\} \quad (5.9)$$

En projetant sur la base des kets $|a\rangle$ et $|b\rangle$:

$$\dot{C}_a = -i\omega_a C_a - i \frac{p_{ba}\mathcal{E}}{\hbar} e^{-i\Phi} \cos(\nu t) C_b \quad \dot{C}_b = -i\omega_b C_b - i \frac{p_{ba}\mathcal{E}}{\hbar} e^{i\Phi} \cos(\nu t) C_a \quad (5.10)$$

Nous définissons la fréquence de Rabi comme :

$$\boxed{\Omega_R = \frac{|p_{ba}| \mathcal{E}}{\hbar}} \quad (5.11)$$

Cette grandeur, dénommée fréquence de Rabi, est fondamentale. Nous la retrouverons dans la formulations d'un critère qui sera établi au chapitre (6).

5.1.2 Systèmes d'équations de Bloch et leurs solutions

Nous réécrivons le système d'équations (5.10) avec la notation de la pulsation de Rabi :

$$\begin{cases} \dot{C}_a = -i\omega_a C_a - i\Omega_R e^{-i\phi} \cos(\nu t) C_b \\ \dot{C}_b = -i\omega_b C_b - i\Omega_R e^{i\phi} \cos(\nu t) C_a \end{cases} \quad (5.12)$$

ϕ désigne la phase de l'élément de matrice $p_{ba} = |p_{ba}| \cdot \exp(i\phi)$.

Pour résoudre ce système simplifié (mais fondamental) d'équations de Bloch, nous l'explicitons, en premier lieu, à partir des amplitudes de probabilité variant lentement :

$$c_a = C_a e^{i\omega_a t} \quad c_b = C_b e^{i\omega_b t} \quad (5.13)$$

Notons que le vecteur d'état général devient :

$$|\psi(t)\rangle = c_a(t) e^{-i\omega_a t} |a\rangle + c_b(t) e^{-i\omega_b t} |b\rangle \quad (5.14)$$

Nous obtenons un système d'équations de Bloch pour les amplitudes de probabilité variant lentement :

$$\boxed{\begin{cases} \dot{c}_a = -i\Omega_R e^{(-i\phi)} \cos(\nu t) c_b e^{i\omega t} \\ \dot{c}_b = -i\Omega_R e^{(i\phi)} \cos(\nu t) c_a e^{-i\omega t} \end{cases}} \quad (5.15)$$

où nous avons la fréquence de transition atomique de la matière $\omega = \omega_a - \omega_b$. Nous posons $\cos(\nu t) = \frac{1}{2}(e^{i\nu t} + e^{-i\nu t})$. Le système (5.15) s'écrit :

$$\dot{c}_a = -i\frac{\Omega_R}{2} e^{(-i\phi)} c_b \left\{ e^{i(\omega-\nu)t} + e^{i(\omega+\nu)t} \right\} \quad \dot{c}_b = -i\frac{\Omega_R}{2} e^{(i\phi)} c_a \left\{ e^{-i(\omega+\nu)t} + e^{-i(\omega-\nu)t} \right\} \quad (5.16)$$

Nous exploitons l'approximation séculaire, c'est-à-dire que nous négligeons les termes anti-résonants $\exp(\pm i(\omega + \nu)t)$ devant $\exp(\pm i(\omega - \nu)t)$. Le système (5.16) s'évalue comme

suit :

$$\dot{c}_a = -i \frac{\Omega_R}{2} e^{(-i\phi)} c_b e^{i(\omega-\nu)t} \quad \dot{c}_b = -i \frac{\Omega_R}{2} e^{(i\phi)} c_a e^{-i(\omega-\nu)t} \quad (5.17)$$

Nous obtenons les solutions :

$$c_a(t) = \left(a_1 e^{\frac{i\Omega t}{2}} + a_2 e^{\frac{-i\Omega t}{2}} \right) e^{\frac{i\Delta t}{2}} \quad c_b(t) = \left(b_1 e^{\frac{i\Omega t}{2}} + b_2 e^{\frac{-i\Omega t}{2}} \right) e^{\frac{-i\Delta t}{2}} \quad (5.18)$$

a_1, a_2, b_1 et b_2 sont des constantes d'intégration.

$$\Delta = \omega - \nu$$

$$\Omega = \sqrt{\Omega_R^2 + (\omega - \nu)^2} \quad (5.19)$$

Ω désigne la pulsation de Rabi hors résonance.

Lorsque nous introduisons des termes de pompage et de relaxation dans le système (5.17) et lorsque que le champ électrique d'excitation est en résonance avec la pulsation de transition atomique, les variables "réalisées" à partir des amplitudes de probabilité variant lentement auront un régime transitoire oscillant avec la pulsation de Rabi et convergeant vers des valeurs stationnaires de "saturation". Ainsi, l'inversion $W(t) = |c_a(t)|^2 - |c_b(t)|^2$ oscille à résonance avec la pulsation de Rabi et converge vers une valeur d'inversion dite de saturation. Quant à la valeur moyenne de l'opérateur moment dipolaire électrique, nous avons l'expression :

$$P(t) = -e \langle \psi(t) | X | \psi(t) \rangle = C_a^* C_b p_{ab} + c.c. \\ P(t) = c_a^* c_b p_{ab} e^{i\omega t} + c.c. \quad (5.20)$$

A résonance, la valeur moyenne du moment dipolaire électrique oscille à la pulsation $\omega = \nu$. Nous rappelons la définition de $\omega = \omega_a - \omega_b$. Nous avons été explicite quant aux calculs précédents parce qu'ils sont les prototypes d'un raffinement élaboré lors de calculs ultérieurs à trois niveaux "électroniques" d'énergie. Nous allons dans la section suivante poser les équations du laser à deux niveaux électroniques telles que réalisées par Hermann Haken. Nous reproduirons les calculs menés par cet auteur.

5.2 Équations du laser à deux niveaux; selon H. Haken

Nous établissons, selon l'approche semi-classique (description quantique des atomes du matériau actif de la cavité et champ électrique traité comme une variable classique dépendante du temps) considérée par Hermann Haken dans son ouvrage [43], les équations du laser à deux niveaux "électroniques" d'énergie. Nous détaillons cette mise en équations parce qu'elle apporte un éclairage quant à celle effectuée pour un système à trois niveaux "électroniques" d'énergie. Nous indiquerons les équations de la matière et l'équation d'évolution du mode de champ électrique.

5.2.1 Equations de la matière

La fonction d'onde du matériau vérifie l'équation fondamentale de Schrödinger (idem 5.8) :

$$i\hbar|\dot{\psi}(t)\rangle = H|\psi(t)\rangle \quad (5.21)$$

L'Hamiltonien, selon la méthode des perturbations, est décomposé comme en (5.1) :

$$H = H_0 + H^S \quad (5.22)$$

H_0 possède deux états propres supposés non dégénérés; l'équation aux valeurs propres se formule comme en (5.2).

$$H_0|\phi_j\rangle = W_j|\phi_j\rangle, \quad j = 1, 2, \quad (5.23)$$

La fonction d'onde générale (voire 5.14), exprimée au moyen des amplitudes de probabilité variant lentement, s'écrit :

$$|\psi(t)\rangle = c_1(t) e^{-i\frac{W_1 t}{\hbar}} |\phi_1\rangle + c_2(t) e^{-i\frac{W_2 t}{\hbar}} |\phi_2\rangle \quad (5.24)$$

L'Hamiltonien de perturbations dû au moment dipolaire électrique résiduel est défini par :

$$H^S = e \mathbf{R} \cdot \mathbf{E}(t) \quad (5.25)$$

Nous exploitons l'équation de Schrödinger et projetons sur le bra $\langle\phi_1|$:

$$i\hbar \left\{ \dot{c}_1 e^{-i\frac{W_1 t}{\hbar}} + c_1 \times \left(\frac{-iW_1}{\hbar} \right) e^{-i\frac{W_1 t}{\hbar}} \right\} = c_1 e^{-i\frac{W_1 t}{\hbar}} W_1 + \langle\phi_1|H^S|\phi_2\rangle c_2(t) e^{-i\frac{W_2 t}{\hbar}} \quad (5.26)$$

Cette équation se simplifie et nous obtenons :

$$\dot{c}_1 = \frac{1}{i\hbar} c_2(t) \cdot \langle \phi_1 | H^S | \phi_2 \rangle e^{+i \frac{(W_1 - W_2)t}{\hbar}} \quad (5.27)$$

Nous exploitons la résolution de l'identité exprimée dans la base $\{|\mathbf{R}\rangle\}$. Aussi l'élément de matrice dans (5.27) s'évalue :

$$\langle \phi_1 | H^S \cdot 1 | \phi_2 \rangle = \langle \phi_1 | H^S \int |\mathbf{R}\rangle \langle \mathbf{R}| d^3\mathbf{R} | \phi_2 \rangle = e \left\{ \int \langle \phi_1 | \mathbf{R} \rangle \langle \mathbf{R} | \phi_2 \rangle \mathbf{R} d^3\mathbf{R} \right\} \cdot \mathbf{E}(t) \quad (5.28)$$

Nous avons exploité l'équation aux valeurs propres pour l'opérateur vecteur position ; dans la dernière expression de (5.28), \mathbf{R} désigne une valeur propre. Nous savons que $\langle \mathbf{R} | \phi_2 \rangle = \phi_2(\mathbf{R})$ et $\langle \phi_1 | \mathbf{R} \rangle = \phi_1^*(\mathbf{R})$. L'équation (5.27) s'explique :

$$\dot{c}_1 = \frac{1}{i\hbar} \mathbf{E}(t) \cdot \left\{ \int \phi_1^*(\boldsymbol{\xi}) e \boldsymbol{\xi} \phi_2(\boldsymbol{\xi}) d^3\boldsymbol{\xi} \exp \left[i \frac{(W_1 - W_2)t}{\hbar} \right] \right\} c_2(t) \quad (5.29)$$

Nous introduisons l'élément de matrice comme en [44] :

$$\mathbf{H}_{12}^S = \int \phi_1^*(\boldsymbol{\xi}) e \boldsymbol{\xi} \phi_2(\boldsymbol{\xi}) d^3\boldsymbol{\xi} \exp \left[i \frac{(W_1 - W_2)t}{\hbar} \right] \quad (5.30)$$

Nous posons la notation :

$$\omega_{12} = \frac{(W_1 - W_2)}{\hbar} \quad (5.31)$$

L'équation (5.30) se réécrit :

$$\mathbf{H}_{12}^S = \int \phi_1^*(\boldsymbol{\xi}) e \boldsymbol{\xi} \phi_2(\boldsymbol{\xi}) d^3\boldsymbol{\xi} \exp [i\omega_{12}t] \quad (5.32)$$

Au final, l'équation (5.27) s'énonce comme suit :

$$\dot{c}_1 = \frac{1}{i\hbar} \mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{H}_{12}^S c_2(t) \quad (5.33)$$

C'est l'équation (5.22) dans [44]. Nous travaillons à l'obtention de l'équation "symétrique".

Nous obtenons bien le système :

$$\boxed{\begin{cases} \dot{c}_1 = \frac{1}{i\hbar} \mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{H}_{12}^S c_2(t) \\ \dot{c}_2 = \frac{1}{i\hbar} \mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{H}_{21}^S c_1(t) \end{cases}} \quad (5.34)$$

Ce système est à comparer aux équations (5.15) ; il y a de parfaites similitudes. Pour obtenir le système (5.34), nous avons en outre supposé que l'atome à deux niveaux d'énergie ne possédait pas de moment dipolaire électrique statique, ce qui se traduit par :

$$\mathbf{H}_{11}^S = \mathbf{H}_{22}^S = 0 \quad (5.35)$$

Nous évaluons la valeur moyenne de l'opérateur moment dipolaire électrique \mathbf{p} qui déterminera la polarisation du milieu. Nous écrivons :

$$\mathbf{p} = \langle \Psi(t) | (-e)\boldsymbol{\xi} | \Psi(t) \rangle = \int \Psi^*(\boldsymbol{\xi}, t) (-e)\boldsymbol{\xi} \Psi(\boldsymbol{\xi}, t) d^3\xi \quad (5.36)$$

En insérant dans cette expression, la formule de la fonction d'onde générale (5.24), nous pouvons poser :

$$-\mathbf{p} = c_1^* c_2 \exp[-i\bar{\omega}t] \boldsymbol{\theta}_{12} + c_1 c_2^* \exp[i\bar{\omega}t] \boldsymbol{\theta}_{21} \quad (5.37)$$

Nous avons utilisé les abréviations comme dans [45] :

$$\bar{\omega} = \frac{W_2 - W_1}{\hbar} \quad \boldsymbol{\theta}_{jk} = \int \phi_j^* e\boldsymbol{\xi} \phi_k d^3\xi \quad (5.38)$$

Nous introduisons la première variable de nos équations du laser à état solide; la cohérence entre les deux niveaux d'énergie de l'atome :

$$\alpha(t) = c_1^* c_2 \exp[-i\bar{\omega}t] \quad (5.39)$$

La valeur moyenne de l'opérateur moment dipolaire électrique se note :

$$\mathbf{p} = \mathbf{p}^{(+)} + \mathbf{p}^{(-)} = (-\alpha(t) \boldsymbol{\theta}_{12}) + (-\alpha^*(t) \boldsymbol{\theta}_{21}) \quad (5.40)$$

Nous exprimons sous une forme légèrement différente le système (5.34) :

$$\boxed{\begin{cases} \dot{c}_1 = \frac{1}{i\hbar} \mathbf{E}(t) \cdot \boldsymbol{\theta}_{12} \exp[-i\bar{\omega}t] c_2(t) \\ \dot{c}_2 = \frac{1}{i\hbar} \mathbf{E}(t) \cdot \boldsymbol{\theta}_{21} \exp[i\bar{\omega}t] c_1(t) \end{cases}} \quad (5.41)$$

Nous prenons la dérivée par rapport au temps de la cohérence $\alpha(t)$ et exploitons le précédent système. Nous obtenons alors une équation décrivant "la matière" pour cette variable :

$$\dot{\alpha} = -i\bar{\omega} \alpha - \frac{1}{i\hbar} \mathbf{E}(t) \cdot \boldsymbol{\theta}_{21} d \quad (5.42)$$

où nous avons introduit l'abréviation :

$$d = |c_2|^2 - |c_1|^2 \quad (5.43)$$

d désigne l'inversion de populations. C'est la seconde variable décrivant "la matière" dont les atomes sont à deux niveaux d'énergie. Dans un solide, les atomes interagissent avec les vibrations du cristal et d'autres phénomènes responsables d'un amortissement de la cohérence. Nous introduisons pour une telle description un terme en $-\gamma\alpha$ dans la partie droite de (5.42). Nous constatons qu'il n'y a pas de terme $-\gamma d$: il n'y a pas de "mélanges" d'amortissement. L'une des équations de Bloch pour la matière exprimée au moyen de la variable de cohérence s'établit :

$$\dot{\alpha} = -i\bar{\omega}\alpha - \gamma\alpha - \frac{1}{i\hbar}\mathbf{E}(t) \cdot \boldsymbol{\theta}_{21} d \quad (5.44)$$

Nous dérivons ensuite la variable d par rapport au temps et exploitons le système (5.41). Après une courte transformation, nous lisons :

$$\dot{d} = \frac{2}{i\hbar}\mathbf{E}(t) \cdot (\boldsymbol{\theta}_{21}\alpha^* - \alpha\boldsymbol{\theta}_{12}) \quad (5.45)$$

L'écriture de l'équation de Bloch correspondante est comme suit :

$$\dot{d} = \frac{2}{i\hbar}\mathbf{E}(t) \cdot (\boldsymbol{\theta}_{21}\alpha^* - \alpha\boldsymbol{\theta}_{12}) + \frac{d_0 - d}{T} \quad (5.46)$$

Il n'y a pas de "mélanges" d'amortissement (absence de terme en $-\gamma\alpha$) et la constante de temps T est associée à un temps de relaxation longitudinale. Lorsque nous nous plaçons sous la condition de seuil, il n'y a pas de partie cohérente pour la cohérence et le champ électrique, aussi $d = \text{constante} = d_0$. Cette dernière constante ou condition initiale pour l'inversion de populations est dite non-saturée. Notre système "matériau" est constitué de N atomes actifs. Nous employons l'indice μ pour désigner un atome particulier. Les équations de la matière se formulent (il y a autant d'équations que d'atomes dans notre matériau) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\alpha}_\mu = -i\bar{\omega}\alpha_\mu - \gamma\alpha_\mu - \frac{1}{i\hbar}\mathbf{E}(\mathbf{x}_\mu, t) \cdot \boldsymbol{\theta}_{21} d_\mu \\ \dot{d}_\mu = \frac{2}{i\hbar}\mathbf{E}(\mathbf{x}_\mu, t) \cdot (\boldsymbol{\theta}_{21}\alpha_\mu^* - \alpha_\mu\boldsymbol{\theta}_{12}) + \frac{d_0 - d_\mu}{T} \\ \mathbf{p}_\mu = \mathbf{p}_\mu^{(+)} + \mathbf{p}_\mu^{(-)} = (-\alpha_\mu(t)\boldsymbol{\theta}_{12}) + (-\alpha_\mu^*(t)\boldsymbol{\theta}_{21}) \end{array} \right. \quad (5.47)$$

Le vecteur polarisation dispose de la prescription usuelle :

$$\mathbf{P}(\mathbf{x}, t) = \sum_{\mu} \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}_{\mu}) \cdot \mathbf{p}_{\mu} \quad (5.48)$$

Nous allons maintenant introduire l'équation pour le champ électrique. Nous en donnons une dérivation à partir des équations de Maxwell.

5.2.2 Equation pour le champ électrique total

Nous savons d'après l'équation de Maxwell-Faraday :

$$\nabla \wedge \mathbf{E} = -\dot{\mathbf{B}} \quad (5.49)$$

L'équation d'Ampère fournit :

$$\nabla \wedge \mathbf{H} = \mathbf{j} + \dot{\mathbf{D}} \quad (5.50)$$

Pour un milieu linéaire, l'excitation électrique \mathbf{D} dépend du champ électrique via la polarisation du milieu :

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad (5.51)$$

Les pertes diélectriques dans le milieu actif et sur les miroirs de la cavité sont modélisées à partir de l'expression de la loi d'Ohm pour le vecteur densité de courant \mathbf{j} .

$$\mathbf{j} = \sigma \mathbf{E} \quad (5.52)$$

où σ désigne la conductivité électrique. Le matériau sera considéré comme non-magnétique :

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H} \quad (5.53)$$

Nous ne traitons que de phénomènes de propagation d'ondes, aussi nous supposons que le champ électrique est transversal, ce qui est équivalent à la formulation :

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = 0 \quad (5.54)$$

Nous prenons le rotationnel de l'équation (5.49) :

$$\nabla \wedge (\nabla \wedge \mathbf{E}) = \nabla(\nabla \cdot \mathbf{E}) - \Delta \mathbf{E} = -\Delta \mathbf{E} \quad (5.55)$$

Nous prenons la dérivée par rapport au temps de l'équation (5.50) :

$$-\nabla \wedge \dot{\mathbf{B}} = -\mu_0 \nabla \wedge \dot{\mathbf{H}} = -\mu_0 (\dot{\mathbf{j}} + \ddot{\mathbf{D}}) \quad (5.56)$$

Nous avons les formules intermédiaires :

$$\Delta \mathbf{E} = \mu_0 (\dot{\mathbf{j}} + \ddot{\mathbf{D}}) \quad \dot{\mathbf{j}} = \sigma \dot{\mathbf{E}} \quad \ddot{\mathbf{D}} = \epsilon_0 \ddot{\mathbf{E}} + \ddot{\mathbf{P}} \quad (5.57)$$

L'équation de propagation se lit alors :

$$\Delta \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \ddot{\mathbf{E}} - \mu_0 \sigma \dot{\mathbf{E}} = \mu_0 \ddot{\mathbf{P}} \quad (5.58)$$

Le champ électrique, dans une cavité résonante, peut être représenté par une superposition d'ondes stationnaires :

$$\mathbf{E}(\mathbf{x}, t) = \sum_{\lambda} E_{\lambda}(t) \mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}) \quad (5.59)$$

La partie spatiale des ondes stationnaires s'évalue comme :

$$\mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}) = \mathbf{e}_{\lambda} \mathcal{N} \sin(k_{\lambda} x) \quad (5.60)$$

\mathbf{e}_{λ} est le vecteur unité dans la direction de polarisation du champ électrique. \mathcal{N} est un facteur de normalisation. La théorie de la cavité résonante montre que les fonctions $\mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x})$ obéissent à une relation d'orthonormalité.

$$\int \mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}) \mathbf{u}_{\lambda'}(\mathbf{x}) d^3 \mathbf{x} = \delta_{\lambda \lambda'} \quad (5.61)$$

Parce que la cavité a des ouvertures, la relation précédente est valide seulement de façon approchée. Nous admettons, pour notre problème, sa complète validité. Nous insérons la superposition (5.59) dans l'équation (5.58) et finissons par multiplier cette dernière par $\mathbf{u}_{\lambda'}(\mathbf{x})$. Ensuite nous intégrons sur le volume de la cavité résonante et exploitons la rela-

tion (5.61). Nous avons alors une formule pour la variable de champ électrique $E_\lambda(t)$:

$$\begin{aligned} & \sum_{\lambda'} E_{\lambda'}(t)(-k_{\lambda'}^2) \mathbf{u}_{\lambda'}(\mathbf{x}) - \frac{1}{c^2} \sum_{\lambda'} \ddot{E}_{\lambda'}(t) \mathbf{u}_{\lambda'}(\mathbf{x}) - \mu_0 \sigma \sum_{\lambda'} \dot{E}_{\lambda'}(t) \mathbf{u}_{\lambda'}(\mathbf{x}) = \mu_0 \ddot{\mathbf{P}} \\ & \int \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}) \left\{ \sum_{\lambda'} E_{\lambda'}(t)(-k_{\lambda'}^2) \mathbf{u}_{\lambda'}(\mathbf{x}) - \frac{1}{c^2} \sum_{\lambda'} \ddot{E}_{\lambda'}(t) \mathbf{u}_{\lambda'}(\mathbf{x}) - \mu_0 \sigma \sum_{\lambda'} \dot{E}_{\lambda'}(t) \mathbf{u}_{\lambda'}(\mathbf{x}) \right\} d^3 \mathbf{x} \\ & = E_\lambda(t)(-k_\lambda^2) - \frac{1}{c^2} \ddot{E}_\lambda(t) - \mu_0 \sum_{\lambda'} \dot{E}_{\lambda'}(t) \left(\int \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}) \sigma \mathbf{u}_{\lambda'}(\mathbf{x}) d^3 \mathbf{x} \right) = \mu_0 \int \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}) \ddot{\mathbf{P}} d^3 \mathbf{x} \end{aligned} \quad (5.62)$$

L'équation de propagation en la variable de champ $E_\lambda(t)$ est donc la suivante :

$$\boxed{\omega_\lambda^2 E_\lambda(t) + \ddot{E}_\lambda(t) + \frac{1}{\epsilon_0} \sum_{\lambda'} \dot{E}_{\lambda'}(t) \sigma_{\lambda\lambda'} = -\frac{1}{\epsilon_0} \ddot{\mathbf{P}}_\lambda} \quad (5.63)$$

Dans l'équation précédente nous avons les expressions :

$$\sigma_{\lambda\lambda'} = \int \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}) \sigma \mathbf{u}_{\lambda'}(\mathbf{x}) d^3 \mathbf{x} \quad (5.64)$$

$$\mathbf{P}_\lambda(t) = \int \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}) \mathbf{P}(\mathbf{x}, t) d^3 \mathbf{x} \quad (5.65)$$

σ note la conductivité électrique du matériau de la cavité. Si ce matériau possède une conductivité homogène, nous obtenons alors $\sigma_{\lambda\lambda'} = \sigma \cdot \delta_{\lambda\lambda'}$.

Connaissant la définition de la moyenne de l'opérateur moment dipolaire électrique \mathbf{p}_μ et la prescription vérifiée par la polarisation du milieu $\mathbf{P}(\mathbf{x}, t) = \sum_{\mu} \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}_\mu) \mathbf{p}_\mu$, nous disposons d'une évaluation de \mathbf{P}_λ :

$$\mathbf{P}_\lambda = \mathbf{P}_\lambda^{(+)} + \mathbf{P}_\lambda^{(-)} = - \underbrace{\sum_{\mu} \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \cdot \boldsymbol{\theta}_{12} \alpha_\mu(t)}_{\mathbf{P}_\lambda^{(+)}} + \underbrace{c.c.}_{\mathbf{P}_\lambda^{(-)}} \quad (5.66)$$

L'équation (5.66) relie la polarisation du milieu à la variable cohérence des atomes de la matière. Nous ré-exprimons les équations du laser à état solide pour deux niveaux élec-

troniques d'énergie :

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\alpha}_\mu = (-i\bar{\omega} - \gamma)\alpha_\mu - \frac{1}{i\hbar} d_\mu \sum_\lambda E_\lambda(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \cdot \boldsymbol{\theta}_{21} \\ \dot{d}_\mu = \frac{d_0 - d_\mu}{T} + \frac{2}{i\hbar} \left(\boldsymbol{\theta}_{21} \alpha_\mu^* - \alpha_\mu \boldsymbol{\theta}_{12} \right) \sum_\lambda E_\lambda(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \\ \omega_\lambda^2 E_\lambda(t) + \ddot{E}_\lambda(t) + \frac{1}{\epsilon_0} \sum_{\lambda'} \dot{E}_{\lambda'}(t) \sigma_{\lambda\lambda'} = -\frac{1}{\epsilon_0} \ddot{P}_\lambda \end{array} \right. \quad (5.67)$$

Nous allons exploiter deux approximations importantes. La première a déjà été utilisée lors du traitement de l'interaction d'un champ électrique décrit classiquement avec un système à deux niveaux électroniques de matière "quantifiée". La seconde approximation est nouvelle et sera appliquée à la variable de mode du champ électrique. Combinée à l'équation de propagation pour ce champ, cette approximation fournira une équation du premier ordre en la variable de temps.

5.2.3 Application de l'approximation séculaire

Nous traitons l'approximation séculaire. A cet effet, nous décomposons l'amplitude du mode du champ électrique $E_\lambda(t)$ en ses parties fréquences positive et négative :

$$E_\lambda(t) = E_\lambda^{(+)}(t) + E_\lambda^{(-)}(t) \quad (5.68)$$

où ces parties sont définies par :

$$E_\lambda^{(+)}(t) = A_\lambda \exp[-i\omega_\lambda t], \quad E_\lambda^{(-)}(t) = A_\lambda^* \exp[i\omega_\lambda t] \quad (5.69)$$

Nous admettons que les amplitudes A_λ et A_λ^* dépendent du temps, mais leur dépendance est beaucoup plus lente que l'évolution des fonctions exponentielles comme données dans (5.69). Les fonctions en α_μ sont oscillantes selon $\exp[-i\bar{\omega}t]$. Nous multiplions la première équation de (5.67) par $\exp[i\bar{\omega}t]$: les termes de cette équation sont alors très lentement variables. La fonction d_μ est constante égale à sa valeur stationnaire issue d'un système d'équations de Bloch. Il faut prendre la partie positive de l'amplitude de mode $E_\lambda^{(+)}$ afin que le second terme de la partie droite de cette équation soit aussi constant (pro-

proportionnel à $\exp [i(\bar{\omega} - \omega_\lambda) t]$. L'équation en question se réécrit :

$$\dot{\alpha}_\mu = (-i\bar{\omega} - \gamma)\alpha_\mu - \frac{1}{i\hbar} d_\mu \sum_\lambda E_\lambda^{(+)}(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \cdot \boldsymbol{\theta}_{21} \quad (5.70)$$

De la même manière la seconde équation de (5.67) se réévalue :

$$\dot{d}_\mu = \frac{d_0 - d_\mu}{T} + \frac{2}{i\hbar} \left(\alpha_\mu^* \sum_\lambda E_\lambda^{(+)}(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \cdot \boldsymbol{\theta}_{21} - \alpha_\mu \sum_\lambda E_\lambda^{(-)}(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \cdot \boldsymbol{\theta}_{12} \right) \quad (5.71)$$

Avec des notations évidentes, nous pouvons formuler la troisième équation de (5.67) avec les variables $E_\lambda(t)$ et $P_\lambda(t)$ présentant un "exposant" \pm .

5.2.4 Application de l'approximation de l'amplitude variant lentement

Nous simplifions maintenant l'équation de propagation du mode de champ électrique en exploitant l'approximation de l'amplitude variant lentement. Nous travaillons à partir de la variable de mode en partie fréquence positive $E_\lambda^{(+)}(t)$. Nous posons :

$$E_\lambda^{(+)}(t) = A_\lambda(t) \exp[-i\omega_\lambda t] \quad (5.72)$$

$A_\lambda(t)$ dépend du temps, mais cette amplitude change beaucoup plus lentement que la fonction exponentielle qui l'accompagne. Ce comportement se détermine comme suit :

$$\left| \frac{dA_\lambda}{dt} \right| \ll |\omega_\lambda A_\lambda| \quad (5.73)$$

Nous dérivons l'expression (5.72) par rapport au temps :

$$\frac{d}{dt} E_\lambda^{(+)} = \left(-i\omega_\lambda A_\lambda + \frac{dA_\lambda}{dt} \right) \exp[-i\omega_\lambda t] \approx -i\omega_\lambda E_\lambda^{(+)} \quad (5.74)$$

Nous évaluons l'expression $\omega_\lambda^2 E_\lambda^{(+)} + \ddot{E}_\lambda^{(+)}$:

$$\omega_\lambda^2 E_\lambda^{(+)} + \ddot{E}_\lambda^{(+)} = \exp[-i\omega_\lambda t] (\omega_\lambda^2 A_\lambda - \omega_\lambda^2 A_\lambda - 2i\omega_\lambda \dot{A}_\lambda + \ddot{A}_\lambda) \quad (5.75)$$

En analogie avec (5.73), nous supposons aussi l'inégalité :

$$|\ddot{A}_\lambda| \ll |\omega_\lambda \dot{A}_\lambda| \quad (5.76)$$

d'où l'expression approchée :

$$\omega_\lambda^2 E_\lambda^{(+)} + \ddot{E}_\lambda^{(+)} \approx -2i\omega_\lambda \dot{A}_\lambda \exp[-i\omega_\lambda t] = -2i\omega_\lambda \left(\dot{E}_\lambda^{(+)} + i\omega_\lambda E_\lambda^{(+)} \right) \quad (5.77)$$

Nous procédons ensuite au calcul de la polarisation P_λ :

$$\ddot{P}_\lambda^{(\pm)} \approx -\bar{\omega}^2 P_\lambda^{(\pm)} \quad (5.78)$$

Nous énonçons ainsi l'équation pour le champ électrique :

$$\begin{aligned} \omega_\lambda^2 E_\lambda(t) + \ddot{E}_\lambda(t) + \frac{1}{\epsilon_0} \sum_{\lambda'} \dot{E}_{\lambda'}(t) \sigma_{\lambda\lambda'} &= -\frac{1}{\epsilon_0} \ddot{P}_\lambda \\ -2i\omega_\lambda \left(\dot{E}_\lambda^{(+)} + i\omega_\lambda E_\lambda^{(+)} \right) + \frac{\sigma_\lambda}{\epsilon_0} \dot{E}_\lambda^{(+)} &= \frac{\bar{\omega}^2}{\epsilon_0} P_\lambda^{(+)} \\ -2i\omega_\lambda \left(\dot{E}_\lambda^{(+)} + i\omega_\lambda E_\lambda^{(+)} \right) - i \frac{\sigma_\lambda}{\epsilon_0} \omega_\lambda E_\lambda^{(+)} &= \frac{\bar{\omega}^2}{\epsilon_0} P_\lambda^{(+)} \\ -2i \left(\dot{E}_\lambda^{(+)} + i\omega_\lambda E_\lambda^{(+)} \right) - i \frac{\sigma_\lambda}{\epsilon_0} E_\lambda^{(+)} &= \frac{\bar{\omega}}{\epsilon_0} P_\lambda^{(+)} \end{aligned} \quad (5.79)$$

Nous avons admis $\sigma_{\lambda\lambda'} = \sigma_\lambda \cdot \delta_{\lambda\lambda'}$ et nous avons considéré que $\bar{\omega} \approx \omega_\lambda$ (nous nous plaçons à la résonance). L'équation du mode de champ électrique s'écrit alors :

$$\dot{E}_\lambda^{(+)} = \left(-i\omega_\lambda - \frac{\sigma_\lambda}{2\epsilon_0} \right) E_\lambda^{(+)} + \frac{i\bar{\omega}}{2\epsilon_0} P_\lambda^{(+)} \quad (5.80)$$

En introduisant l'abréviation $\kappa_\lambda = \frac{\sigma_\lambda}{2\epsilon_0}$, cette équation s'énonce finalement comme suit :

$$\boxed{\dot{E}_\lambda^{(+)} = (-i\omega_\lambda - \kappa_\lambda) E_\lambda^{(+)} + \left[\frac{i\bar{\omega}}{(2\epsilon_0)} \right] P_\lambda^{(+)}} \quad (5.81)$$

En définitive, nous introduisons des quantités sans dimension pour le champ électrique et une constante de couplage :

$$\begin{aligned} E_\lambda^{(+)}(t) &= i \sqrt{\frac{\hbar\omega_\lambda}{2\epsilon_0}} b_\lambda(t) \\ E_\lambda^{(-)}(t) &= -i \sqrt{\frac{\hbar\omega_\lambda}{2\epsilon_0}} b_\lambda^*(t) \\ g_{\mu\lambda} &= i \boldsymbol{\theta}_{21} \cdot \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \sqrt{\frac{\omega_\lambda}{2\epsilon_0\hbar}} \end{aligned} \quad (5.82)$$

Nous réécrivons l'ensemble des équations du laser à état solide (lorsque le matériau est constitué d'atomes à deux niveaux "électroniques" d'énergie) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\alpha}_\mu = (-i\bar{\omega}_\mu - \gamma)\alpha_\mu + i \sum_\lambda g_{\mu\lambda} b_\lambda d_\mu \\ \dot{d}_\mu = \frac{d_0 - d_\mu}{T} + 2i \sum_\lambda (\alpha_\mu g_{\mu\lambda}^* b_\lambda^* - \alpha_\mu^* g_{\mu\lambda} b_\lambda) \\ \dot{b}_\lambda = (-i\omega_\lambda - \kappa_\lambda) b_\lambda - i \sum_\mu g_{\mu\lambda}^* \alpha_\mu \end{array} \right. \quad (5.83)$$

L'indice μ repère un atome en particulier. Aussi, il y a autant de systèmes que d'atomes dans notre matériau actif. La pulsation correspondant à la transition entre les deux niveaux électroniques sera fonction du type d'atome, donc dépendante de cet indice μ . Ces systèmes sont non-linéaires parce qu'ils comprennent des termes avec des produits quadratiques des différentes variables. Cette non-linéarité ne sera pas exploitée dans le présent travail. Nous nous attacherons par contre à déterminer les conditions de seuil de l'effet laser. Nous établirons donc les équations de van der Pol associées en nous intéressant à leur partie linéaire. Néanmoins, pour des systèmes à deux niveaux d'énergie, cette condition de seuil peut être établie facilement au moyen d'une équation "séculaire". C'est le traitement que nous entreprenons.

5.3 Le seuil laser au moyen d'une équation séculaire

Nous déterminons la condition de seuil laser pour un système à deux niveaux. Nous nous plaçons dans le cas d'un champ laser monomode ($b_\lambda = b$). $g_{\mu,\lambda} = g$ sera supposé réel. La condition de résonance $\omega_\lambda = \bar{\omega} = \omega$ est posée. Nous simplifions le système (5.83) :

$$\begin{aligned} \dot{b} &= (-i\omega - \kappa)b - ig \sum_\mu \alpha_\mu \\ \dot{\alpha}_\mu &= (-i\omega - \gamma)\alpha_\mu + igb d_\mu \\ \dot{d}_\mu &= \frac{1}{T}(d_0 - d_\mu) + (2i\alpha_\mu g b^* + c.c) \end{aligned} \quad (5.84)$$

La solution en dessous du seuil de l'effet laser est caractérisée par $b = \alpha_\mu = 0$ et $d_\mu = d_0 = \text{constante}$. Elle correspond à l'absence de parties cohérentes pour le mode de champ et la variable de cohérence. Nous nous plaçons autour du seuil. Nous superposons de petites déviations δb , $\delta\alpha_\mu$ et δd_μ sur b , α_μ et d_μ respectivement et nous linéarisons le sys-

tème d'équations (5.84). Nous négligeons ainsi les termes quadratiques de ces quantités tels que $\delta d_\mu \delta b$. Pour cette approximation, la troisième équation du système précédent est toujours vérifiée avec $d_\mu = d_0$ et les deux premières se réécrivent :

$$\begin{aligned}\delta \dot{b} &= (-i\omega - \kappa)\delta b - ig \sum_{\mu} \delta \alpha_{\mu} \\ \delta \dot{\alpha}_{\mu} &= (-i\omega - \gamma)\delta \alpha_{\mu} + ig \delta b d_0\end{aligned}\quad (5.85)$$

Nous introduisons la somme de tous les moments dipolaires électriques comme une nouvelle variable :

$$\sum_{\mu} \alpha_{\mu} = S \quad \sum_{\mu} 1 = N = \text{nombre total d'atomes} \quad (5.86)$$

Les nouvelles équations se notent comme suit :

$$\begin{aligned}\delta \dot{b} &= (-i\omega - \kappa)\delta b - ig \delta S \\ \delta \dot{S} &= (-i\omega - \gamma)\delta S + ig D_0 \delta b\end{aligned}\quad (5.87)$$

où $D_0 = Nd_0$ est l'inversion non-saturée de tous les atomes. Pour résoudre ce système d'équations linéaires couplées, nous posons la forme usuelle des variables δb et δS comme des oscillations amorties :

$$\begin{aligned}\delta b &= \delta b_0 \exp[(-i\Omega + \Gamma)t] \\ \delta S &= \delta S_0 \exp[(-i\Omega + \Gamma)t]\end{aligned}\quad (5.88)$$

où δb_0 et δS_0 sont des constantes indépendantes du temps. Ω est une fréquence alors que Γ note un amortissement. Lorsque Γ est positif, nous pouvons alors dire que nous fonctionnons en régime laser. En insérant (5.88) dans le système (5.87), nous obtenons deux équations linéaires homogènes pour δb_0 et δS_0 . Afin de trouver une solution non-triviale à ce système, son déterminant doit être nul : cette condition conduit à une équation algébrique dénommée "séculaire" :

$$(i\omega + \kappa - i\Omega + \Gamma)(i\omega + \gamma - i\Omega + \Gamma) - g^2 D_0 = 0 \quad (5.89)$$

Nous la résolvons en ces parties réelle et imaginaire. La partie imaginaire fournit $\omega = \Omega$ et la partie réelle produit deux solutions Γ_+ et Γ_- ,

$$\Gamma_{\pm} = -\frac{\kappa + \gamma}{2} \pm \sqrt{\left(\frac{\kappa - \gamma}{2}\right)^2 + g^2 D_0} \quad (5.90)$$

La solution Γ_+ peut devenir éventuellement positive, ce qui définit le seuil laser. Cette positivité est équivalente à :

$$\boxed{D_0 > \frac{\kappa \gamma}{g^2}} \quad (5.91)$$

C'est la condition de seuil recherchée. D_0 est à rattacher à la puissance de pompage du laser à deux niveaux "électroniques" d'énergie.

La puissance de pompage est réduite, entre autres, lorsque les pertes de la cavité sont minimisées et la transition dipolaire électrique "autorisée". Nous allons établir la condition de seuil de l'effet laser pour un système caractérisé par une injection de matériau actif dans la cavité suite à un pompage. C'est la problème traité par Scully et al.

5.4 Seuil d'un laser à deux niveaux selon Scully et al.

Nous donnons maintenant une dérivation du seuil de l'effet laser selon Scully et al. [46]. Il y a pompage de matériau actif dans la cavité du laser ce qui distingue ce dernier des lasers à état solide.

5.4.1 Système d'équations pour la matrice de population

Nous allons définir une matrice de population dont les éléments de matrice ont pour dimension l'inverse d'un volume. L'amplitude du champ électrique et sa phase obéissent aux équations (valides en particulier pour un laser en anneau) :

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial \mathcal{E}}{\partial t} = -\kappa \mathcal{E} - \frac{1}{2\epsilon_0} k \text{Im} \mathcal{P} \quad (5.92)$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial \phi}{\partial t} = k - \frac{\omega}{c} - \frac{1}{2\epsilon_0} k \mathcal{E}^{-1} \text{Re} \mathcal{P} \quad (5.93)$$

où κ exprime les pertes de la cavité et \mathcal{P} désigne la polarisation de la matière. Nous reprenons le problème à deux niveaux que nous traitons dans ses grandes lignes. Le niveau a correspond à celui de plus grande énergie. Nous obtiendrons les équations de la "matière" (populations et cohérence). Ces équations sont valides pour des atomes pris individuel-

lement :

$$\begin{aligned}
 \dot{\rho}_{aa} &= -\gamma_a \rho_{aa} + \frac{i}{\hbar} [p_{ab} E \rho_{ba} - c.c] \\
 \dot{\rho}_{bb} &= -\gamma_b \rho_{bb} - \frac{i}{\hbar} [p_{ab} E \rho_{ba} - c.c] \\
 \dot{\rho}_{ab} &= -(i\omega_{ab} + \gamma_{ab}) \rho_{ab} - \frac{i}{\hbar} p_{ab} E (\rho_{aa} - \rho_{bb})
 \end{aligned} \tag{5.94}$$

Nous définissons la matrice de population et son équation d'évolution *au sens de Scully et al.* Nous considérons l'interaction d'un champ électrique avec un milieu constitué d'atomes à deux niveaux subissant un élargissement homogène. Ces atomes individuels sont décrits par l'opérateur matrice densité :

$$\rho(z, t, t_0) = \sum_{\alpha, \beta} \rho_{\alpha\beta}(z, t, t_0) |\alpha\rangle \langle \beta| \tag{5.95}$$

où $\alpha, \beta = a, b$ et $\rho_{\alpha\beta}(z, t, t_0)$ désignent les éléments de la matrice densité pour un atome individuel à l'instant t et à la position z qui a commencé à interagir avec le champ à l'instant initial t_0 . L'instant initial t_0 peut être aléatoire. Nous avons donc injection de matière dans la cavité. Les éléments de la matrice densité pour l'atome individuel $\rho_{\alpha\beta}(z, t, t_0)$ obéissent aux équations (5.94). Si l'état de l'atome au temps d'injection est décrit par :

$$\rho(z, t_0, t_0) = \sum_{\alpha, \beta} \rho_{\alpha\beta}^{(0)} |\alpha\rangle \langle \beta| \tag{5.96}$$

alors

$$\rho_{\alpha\beta}(z, t_0, t_0) = \rho_{\alpha\beta}^{(0)} \tag{5.97}$$

L'effet de tous les atomes qui sont pompés aux taux $r_a(z, t_0)$ atomes par seconde et par unité de volume est obtenu en sommant sur les temps initiaux d'injection dans la cavité. La matrice de population résultante est alors définie comme :

$$\begin{aligned}
 \tilde{\rho}(z, t) &= \int_{-\infty}^t dt_0 r_a(z, t_0) \rho(z, t, t_0) \\
 &= \sum_{\alpha, \beta} \int_{-\infty}^t dt_0 r_a(z, t_0) \rho_{\alpha\beta}(z, t, t_0) |\alpha\rangle \langle \beta|
 \end{aligned} \tag{5.98}$$

Généralement le taux de pompage $r_a(z, t_0)$ varie lentement avec t_0 et peut être pris comme constant. La polarisation "macroscopique" du milieu, $P(z, t)$, est produite par un ensemble d'atomes injectés qui arrivent à la position z au temps t , quelque soit leur temps d'injec-

tion, c'est-à-dire :

$$\begin{aligned} P(z, t) &= \int_{-\infty}^t dt_0 r_a(z, t_0) \text{Tr}[\hat{p}\rho(z, t, t_0)] \\ &= \sum_{\alpha\beta} \int_{-\infty}^t dt_0 r_a(z, t_0) \rho_{\alpha\beta}(z, t, t_0) p_{\alpha\beta} \end{aligned} \quad (5.99)$$

où \hat{p} est l'opérateur moment dipolaire. Pour un atome à deux niveaux, avec $p_{ab} = p_{ba} = p$, nous obtenons :

$$P(z, t) = p[\tilde{\rho}_{ab}(z, t) + c.c] \quad (5.100)$$

où nous avons l'identité :

$$\tilde{\rho}_{ab}(z, t) = \int_{-\infty}^t dt_0 r_a(z, t_0) \rho_{ab}(z, t, t_0) \quad (5.101)$$

Par conséquent, les éléments non-diagonaux de la matrice densité dite de population déterminent la polarisation "macroscopique" du milieu. Si les atomes sont de façon incohérente excités vers les deux niveaux d'énergie à un taux constant r_a tel que $\rho_{ab}^{(0)} = \rho_{ba}^{(0)} = 0$, nous obtenons à partir de (5.94) :

$$\begin{cases} \dot{\tilde{\rho}}_{aa} = \lambda_a - \gamma_a \tilde{\rho}_{aa} + \frac{i}{\hbar} [pE\tilde{\rho}_{ba} - c.c] \\ \dot{\tilde{\rho}}_{bb} = \lambda_b - \gamma_b \tilde{\rho}_{bb} - \frac{i}{\hbar} [pE\tilde{\rho}_{ba} - c.c] \\ \dot{\tilde{\rho}}_{ab} = -(i\omega_{ab} + \gamma_{ab})\tilde{\rho}_{ab} - \frac{i}{\hbar} pE(\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{bb}) \end{cases} \quad (5.102)$$

où $\lambda_a = r_a \rho_{aa}^{(0)}$ et $\lambda_b = r_b \rho_{bb}^{(0)}$. Ce sont les équations de la "matière" pour une cavité laser dont les éléments actifs sont injectés.

5.4.2 Résolution du système pour la matrice population : une équation de van der Pol

Les équations (5.92) et (5.93) sont les équations de propagation, couplées à la matière par les parties réelle et imaginaire de la polarisation du milieu. Nous savons que :

$$P(z, t) = \frac{1}{2} \mathcal{P}(z, t) e^{-i[\omega t - kz + \phi(z, t)]} + c.c \quad (5.103)$$

et

$$E(z, t) = \frac{1}{2} \mathcal{E}(z, t) e^{-i[\omega t - kz + \phi(z, t)]} + c.c \quad (5.104)$$

de même

$$\mathcal{P}(z, t) = 2p\tilde{\rho}_{ab}e^{i[\omega t - kz + \phi(z, t)]} \quad (5.105)$$

Pour la grandeur κ introduite pour la première fois en (5.2.4), nous avons la relation :

$$\kappa = \frac{\mathcal{C}}{2} \quad (5.106)$$

où $\mathcal{C} = \frac{\omega_c}{Q}$ avec ω_c la pulsation du mode de cavité et Q le facteur qualité de cette dernière.

La polarisation \mathcal{P} est déterminée par l'équation de cohérence du système (5.102). Cela permet de noter :

$$\mathcal{P}(z, t) = \frac{-ip^2}{\hbar} \int_{-\infty}^t \exp[-\gamma_{ab}(t-t') - i(\omega_{ab} - \omega)(t-t')] \times \mathcal{E}(t') [\tilde{\rho}_{aa}(t') - \tilde{\rho}_{bb}(t')] dt' \quad (5.107)$$

L'amplitude $\mathcal{E}(t')$ et la différence de populations $\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{bb}$ ne changent pas de façon appréciable au cours du temps $\frac{1}{\gamma_{ab}}$, aussi ces grandeurs peuvent être sorties de l'intégrale. Cette solution conduit aux équations de taux pour les populations atomiques. De telles approximations sont exactes pour l'état stationnaire avec $\dot{\mathcal{P}} = 0$. L'équation (5.107) produit donc :

$$\text{Im } \mathcal{P}(t) = \frac{-p^2}{\hbar} \mathcal{E}(t) \gamma_{ab} \frac{\tilde{\rho}_{aa}(t) - \tilde{\rho}_{bb}(t)}{\gamma_{ab}^2 + (\omega_{ab} - \omega)^2} \quad (5.108)$$

$$\text{Re } \mathcal{P}(t) = \frac{-p^2}{\hbar} \mathcal{E}(t) (\omega_{ab} - \omega) \frac{\tilde{\rho}_{aa}(t) - \tilde{\rho}_{bb}(t)}{\gamma_{ab}^2 + (\omega_{ab} - \omega)^2} \quad (5.109)$$

En substituant les équations (5.108) et (5.109) dans les équations d'évolution pour les populations $\tilde{\rho}_{aa}$ et $\tilde{\rho}_{bb}$ (5.102), nous dressons les équations de taux :

$$\begin{cases} \dot{\tilde{\rho}}_{aa} = \lambda_a - \gamma_a \tilde{\rho}_{aa} - R(\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{bb}) \\ \dot{\tilde{\rho}}_{bb} = \lambda_b - \gamma_b \tilde{\rho}_{bb} + R(\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{bb}) \end{cases} \quad (5.110)$$

avec la constante de taux R égale à :

$$R = \frac{1}{2} \left(\frac{p\mathcal{E}}{\hbar} \right)^2 \frac{\gamma_{ab}}{\gamma_{ab}^2 + (\omega_{ab} - \omega)^2} \quad (5.111)$$

Pour l'état stationnaire ($\dot{\tilde{\rho}}_{aa} = \dot{\tilde{\rho}}_{bb} = 0$), le système (5.110) produit :

$$\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{bb} = \frac{N_0}{1 + \frac{R}{R_s}} \quad (5.112)$$

où $N_0 = \lambda_a \gamma_a^{-1} - \lambda_b \gamma_b^{-1}$ et $R_s = \frac{\gamma_a \gamma_b}{2\gamma_{ab}}$. La différence de populations "sature" avec une amplitude de champ électrique croissante (valeur quadratique du champ).

Les équations d'évolution pour l'amplitude du champ (5.92) et la phase (5.93) se simplifient pour le présent modèle en les termes :

$$\frac{\partial \mathcal{E}}{\partial t} = -\frac{1}{2} \mathcal{C} \mathcal{E} - \frac{1}{2} \left(\frac{\omega}{\epsilon_0} \right) \text{Im} \mathcal{P} \quad (5.113)$$

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = (\omega_c - \omega) - \frac{1}{2} \left(\frac{\omega}{\epsilon_0} \right) \mathcal{E}^{-1} \text{Re} \mathcal{P} \quad (5.114)$$

En combinant les équations (5.113), (5.112) et (5.108), nous gagnons :

$$\dot{\mathcal{E}} = -\kappa \mathcal{E} + \frac{\mathcal{A} \mathcal{E}}{2 \left[1 + \frac{\mathcal{B}}{\mathcal{A}} \left(\frac{\epsilon_0 V_e}{2\hbar\omega} \right) \mathcal{E}^2 \right]} \quad (5.115)$$

où V_e est le volume de la cavité et

$$\mathcal{A} = \left(\frac{p^2 \omega \gamma_{ab}}{\epsilon_0 \hbar} \right) \frac{N_0}{\gamma_{ab}^2 + (\omega_{ab} - \omega)^2} \quad (5.116)$$

$$\mathcal{B} = \left(\frac{4p^2}{\hbar^2} \right) \left(\frac{\gamma_{ab}^2}{\gamma_a \gamma_b} \right) \frac{\mathcal{A}}{\gamma_{ab}^2 + (\omega_{ab} - \omega)^2} \left(\frac{\hbar\omega}{2\epsilon_0 V_e} \right) \quad (5.117)$$

\mathcal{A} désigne le paramètre de gain linéaire et \mathcal{B} note le paramètre de saturation. Pour un champ électrique faible (nous nous plaçons dans le domaine linéaire), la condition suivante est admise :

$$\frac{\mathcal{B}}{\mathcal{A}} \left(\frac{\epsilon_0 V_e}{2\hbar\omega} \right) \mathcal{E}^2 \ll 1 \quad (5.118)$$

Cela permet d'écrire une équation de van der Pol :

$$\dot{\mathcal{E}} = \left(-\kappa + \frac{\mathcal{A}}{2} \right) \mathcal{E} - \frac{\mathcal{B}}{2} \left(\frac{\epsilon_0 V_e}{2\hbar\omega} \right) \mathcal{E}^3 \quad (5.119)$$

La condition de seuil (c'est-à-dire \mathcal{E} divergeant linéairement) est telle que $(-\kappa + \frac{\mathcal{A}}{2}) > 0$. Nous savons que la fonction \mathbf{u} est homogène à $L^{-\frac{3}{2}}$. Il en résulte que $N_0 = D_0 \cdot \mathbf{u}^2$. A résonance, $\mathcal{A}(\omega_{ab}) = \frac{p^2 \omega_{ab} N_0}{\epsilon_0 \hbar \gamma_{ab}}$. Nous posons :

$$\begin{aligned} -\kappa + \frac{p^2 \omega_{ab} N_0}{2\epsilon_0 \hbar \gamma_{ab}} &> 0 \\ N_0 = D_0 \cdot \mathbf{u}^2 &> \kappa \gamma_{ab} \frac{2\epsilon_0 \hbar}{p^2 \omega_{ab}} \end{aligned} \quad (5.120)$$

La constante de couplage a été définie telle que $g^2 = p^2 \cdot \mathbf{u}^2 \frac{\omega_{ab}}{2\epsilon_0 \hbar}$.

Nous en déduisons :

$$\boxed{D_0 > \frac{\kappa \gamma_{ab}}{g^2}} \quad (5.121)$$

La condition de seuil selon Scully et al. ($\mathcal{A} > 2\kappa$) est équivalente à celle explicitée par H.Haken (5.91). Notre problème à deux niveaux "électroniques" d'énergie est résolu. La méthode employée a été de poser une équation de van der Pol et de déterminer la condition de seuil en indiquant que le coefficient linéaire réel d'une telle équation doit être positif. Pour le système à trois niveaux "électroniques", nous chercherons à poser une équation similaire pour le mode du champ électrique et nous demanderons que le coefficient linéaire réel soit nul. Nous allons reprendre l'établissement des équations du laser à deux niveaux électroniques lorsque le champ électromagnétique est lui aussi quantifié.

5.5 L'approche totalement quantique

Nous établissons les équations du laser à état solide selon H.Haken, mais cette fois-ci dans le cadre de l'optique quantique. Ce point de vue dépasse la méthode semi-classique que nous avons employée dans cet exposé. Nous rappelons, cependant, que la détermination des seuils de l'effet laser est réalisable au moyen de cette méthode semi-classique et c'est cette dernière qui sera exploitée pour notre système à trois niveaux électroniques d'énergie. Nous avons tenu à présenter ce traitement par l'optique quantique à des fins d'exhaustivité et de démonstration de la consistance de nos différentes approches.

5.5.1 Les équations du laser à deux niveaux revisités

Nous redémontrons les équations du laser à deux niveaux, mais dans la présente section, les variables sont des opérateurs quantiques. Nous procédons rapidement en suivant l'exposé de H. Haken [47]. Les équations de Maxwell peuvent s'écrire selon un système d'unités convenable :

$$\left\{ \begin{array}{l} \nabla \wedge \mathbf{H} = \frac{4\pi}{c} \mathbf{j} + \frac{1}{c} \frac{d\mathbf{E}}{dt} + \frac{4\pi}{c} \frac{d\mathbf{P}}{dt} \\ \nabla \wedge \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{d\mathbf{H}}{dt} \\ \nabla \cdot \mathbf{B} = 0, \nabla \cdot \mathbf{D} = 0 \end{array} \right. \quad (5.122)$$

La définition du champ électrique à partir de ses potentiels se lit :

$$\mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{d}{dt} \mathbf{A} - \nabla \phi_P \quad (5.123)$$

$\phi_P = 0$ pour le laser. Le vecteur potentiel se développe selon la forme suivante (c'est une expression équivalente à l'équation 2.65) :

$$\mathbf{A}(\mathbf{x}) = \sum_{\lambda} \sqrt{\frac{2\pi c^2 \hbar}{\omega_{\lambda}}} (b_{\lambda}^{\dagger} + b_{\lambda}) \mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}) \quad (5.124)$$

Ce vecteur potentiel se décompose en parties de fréquences positive et négative :

$$\begin{aligned} \mathbf{A}^{(-)} &= \sum_{\lambda} \sqrt{\frac{2\pi c^2 \hbar}{\omega_{\lambda}}} b_{\lambda}^{\dagger} \mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}) \\ \mathbf{A}^{(+)} &= \sum_{\lambda} \sqrt{\frac{2\pi c^2 \hbar}{\omega_{\lambda}}} b_{\lambda} \mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}) \end{aligned} \quad (5.125)$$

b_{λ}^{\dagger} et b_{λ} sont respectivement les opérateurs de création et d'annihilation pour le mode de photon désigné par λ . Ces opérateurs respectent les relations de commutation usuelles pour les bosons. L'Hamiltonien libre du champ de photons s'évalue (énergie du vecteur obscurité prise à zéro) :

$$H_L = \sum_{\lambda} \hbar \omega_{\lambda} b_{\lambda}^{\dagger} b_{\lambda} \quad (5.126)$$

Nous avons, en suivant le point de vue de Heisenberg, l'expression de l'opérateur champ électrique :

$$\begin{aligned} \frac{d\mathbf{O}}{dt} &= \frac{i}{\hbar} [\mathbf{H}, \mathbf{O}] \\ \mathbf{E} &= -\frac{1}{c} \frac{i}{\hbar} [H_L, \mathbf{A}] = \sum_{\lambda} \mathbf{E}_{\lambda}(\mathbf{x}) \\ \mathbf{E}_{\lambda}(\mathbf{x}) &= -i(b_{\lambda}^{\dagger} - b_{\lambda}) \sqrt{2\pi \hbar \omega_{\lambda}} \mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}) \end{aligned} \quad (5.127)$$

Nous procédons ensuite à une seconde quantification pour les variables électroniques. La fonction d'onde électronique devient un opérateur :

$$\psi(\mathbf{x}) = \sum_j a_j \phi_j(\mathbf{x}) \quad \psi^{\dagger}(\mathbf{x}) = \sum_j a_j^{\dagger} \phi_j^*(\mathbf{x}) \quad (5.128)$$

ψ et ψ^\dagger obéissent à des relations d'anti-commutation usuelles pour les fermions. a_j et a_j^\dagger ont le même comportement. L'Hamiltonien H_{El} de cette seconde quantification peut être obtenu à partir de l'Hamiltonien de l'équation usuelle de Schrödinger :

$$H_0\psi \equiv \left(-\frac{\hbar^2}{2m}\Delta + V(\mathbf{x}) \right) \psi = E\psi \quad (5.129)$$

de la manière qui suit :

$$H_{\text{El}} = \int \psi^\dagger(\mathbf{x}) H_0 \psi(\mathbf{x}) dV \quad H_{\text{El}} = \sum E_j a_j^\dagger a_j \quad (5.130)$$

Pour inclure l'interaction de l'électron avec le champ électromagnétique quantifié nous posons un Hamiltonien avec un couplage minimal comme prouvé dans le second chapitre de ce manuscrit :

$$H = \frac{1}{2m} \left(\mathbf{P} - \frac{q}{c} \mathbf{A} \right)^2 + V(\mathbf{x}) \quad (5.131)$$

Nous obtenons le terme additionnel par rapport à (5.130), $H_I = H_{I-1} + H_{I-2}$:

$$H_{I-1} = \int \psi^\dagger(\mathbf{x}) \left(-\frac{q}{mc} \right) \mathbf{A} \mathbf{p} \psi(\mathbf{x}) dV \quad H_{I-2} = \frac{q^2}{2mc^2} \int \psi^\dagger(\mathbf{x}) \mathbf{A}^2(\mathbf{x}) \psi(\mathbf{x}) dV \quad (5.132)$$

En insérant pour $\psi(\mathbf{x})$ et $\mathbf{A}(\mathbf{x})$, leurs expressions (5.128) et (5.124), nous calculons :

$$H_{I-1} = -\frac{q}{m} \sum_{\lambda,j,l} \sqrt{\frac{2\pi\hbar}{\omega_\lambda}} (b_\lambda^\dagger + b_\lambda) \left(\int \phi_j^* \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}) \mathbf{p} \phi_l dV \right) a_j^\dagger a_l$$

$$H_{I-2} = \frac{q^2}{m} \sum_{\lambda,\lambda',j,l} (\pi\hbar) \frac{1}{\sqrt{\omega_\lambda \omega_{\lambda'}}} \left(\int \phi_j^* \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}) \mathbf{u}_{\lambda'}(\mathbf{x}) \phi_l dV \right) \times (b_\lambda^\dagger + b_\lambda)(b_{\lambda'}^\dagger + b_{\lambda'}) a_j^\dagger a_l \quad (5.133)$$

Nous négligeons H_{I-2} . Dans l'approximation dipolaire $\mathbf{u}(\mathbf{x}) = \mathbf{u}(\mathbf{x}_0)$; nous le sortons de l'intégrale :

$$H_{I-1} = -\frac{q}{m} \sum_{\lambda,j,l} \sqrt{\frac{2\pi\hbar}{\omega_\lambda}} (b_\lambda^\dagger + b_\lambda) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_0) \left(\int \phi_j^* \mathbf{p} \phi_l dV \right) a_j^\dagger a_l \quad (5.134)$$

L'élément de matrice $q \int \phi_j^* \mathbf{p} \phi_l dV$ peut être réécrit comme un élément de matrice dipolaire :

$$m i v_{jl} \int \phi_j^*(e\mathbf{x}) \phi_l dV \quad \text{où } v_{jl} = \frac{1}{\hbar} (E_j - E_l) \quad (5.135)$$

Nous rappelons la formulation de l'Hamiltonien total :

$$H_{Tot} = H_{El} + H_L + H_{I-1} \quad (5.136)$$

Selon le point de vue de Heisenberg, la dérivée d'un opérateur s'évalue :

$$\dot{O}_H = \frac{i}{\hbar} [H_{Tot}, O_H] + \frac{\partial}{\partial t} O_H \quad (5.137)$$

Nous choisissons $O_H = b_\lambda^\dagger$ et nous obtenons l'équation du champ du laser à état solide pour les différents modes :

$$\dot{b}_\lambda^\dagger = i\omega_\lambda b_\lambda^\dagger + i \sum_{j,l,\mu} g_{j,l,\lambda,\mu} a_{j,\mu}^\dagger a_{l,\mu} \quad (5.138)$$

où

$$g_{j,l,\lambda,\mu} = -\frac{1}{\hbar} \frac{q}{m} \sqrt{\frac{\hbar 2\pi}{\omega_\lambda}} \int \Phi_{j,\mu}^* \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}) \cdot \mathbf{p} \Phi_{l,\mu} dV \quad (5.139)$$

Nous menons les substitutions des opérateurs quantiques en variables dynamiques classiques :

$$b_\lambda^\dagger \rightarrow b_\lambda^* \quad b_\lambda \rightarrow b_\lambda \quad a_j^\dagger \rightarrow c_j^* \quad a_j \rightarrow c_j \quad (5.140)$$

L'équation (5.138) est à rapprocher de l'équation du mode du champ électrique du système (5.83).

Nous avons l'équation en variables d'opérateurs quantiques :

$$\frac{d}{dt} (a_{j'}^\dagger a_{l'})_\mu = i \nu_{j'l'} (a_{j'}^\dagger a_{l'})_\mu + i \sum_{j,l,\lambda} g_{j,l,\lambda,\mu} (b_\lambda^\dagger + b_\lambda) \times \left\{ (a_{j'}^\dagger a_{l'})_\mu \delta_{l,j'} - (a_{j'}^\dagger a_{l'})_\mu \delta_{j,l'} \right\} \quad (5.141)$$

L'équation précédente pourrait être exploitée dans le cadre d'un système à plusieurs niveaux (plus de deux niveaux). Nous nous plaçons néanmoins dans celui à deux niveaux. Les indices j et l prennent alors les deux valeurs 2 et 1. Nous obtenons les équations équivalentes de la matière pour l'inversion de populations et la variable de cohérence :

$$\begin{aligned} \Delta N = a_2^\dagger a_2 - a_1^\dagger a_1 \quad \frac{d}{dt} (\Delta N)_\mu &= 2i \sum_\lambda \left(g^* b_\lambda^\dagger (a_1^\dagger a_2)_\mu - g b_\lambda (a_2^\dagger a_1)_\mu \right) \\ \frac{d}{dt} (a_1^\dagger a_2)_\mu &= i \nu_{12} (a_1^\dagger a_2)_\mu + i \sum_\lambda g b_\lambda \Delta N_\mu \end{aligned} \quad (5.142)$$

En réalisant les substitutions comme indiquées dans (5.140), nous évaluons :

$$d_\mu = |c_2|^2 - |c_1|^2 \quad \frac{d}{dt} d_\mu = 2i \sum_\lambda (g^* b_\lambda^* (c_1^* c_2)_\mu - g b_\lambda (c_2^* c_1)_\mu) = 2i \sum_\lambda (g^* b_\lambda^* \alpha_\mu - g b_\lambda \alpha_\mu^*)$$

$$\frac{d}{dt} (c_1^* c_2)_\mu = -i\bar{\omega}_\mu (c_1^* c_2)_\mu + i \sum_\lambda g b_\lambda d_\mu \quad \frac{d}{dt} \alpha_\mu = -i\bar{\omega}_\mu \alpha_\mu + i \sum_\lambda g b_\lambda d_\mu \quad (5.143)$$

Les équations (5.143) sont à rapprocher du système (5.83). Ces équations impliquent des formulations identiques, aux termes près dus aux réservoirs. Ces réservoirs sont responsables des amortissements et des relaxations. Ce qui est surprenant est que l'équation équivalente du mode du champ électrique est obtenue dans la théorie quantique par la dérivation par rapport au temps de l'opérateur de création du boson du champ de lumière selon le point de vue de Heisenberg. Nous constatons par contre que, dans l'approche semi-classique, l'exploitation des équations de Maxwell et l'utilisation de l'approximation de l'amplitude variant lentement a fourni une équation équivalente pour ce mode de champ.

5.5.2 Le seuil laser revisité par une approche totalement quantique

Nous dérivons l'équation de van der Pol pour le laser à état solide. Elle nous permettra d'évaluer la condition de seuil de l'effet laser. Nous supposons donc un laser avec un élargissement inhomogène et un nombre arbitraire de niveaux. Les équations de Langevin pour ce laser sont les suivantes (les équations de la sous-section (5.5.1) auxquelles nous ajoutons des termes stochastiques) :

$$\dot{b}_\lambda^\dagger = (i\omega_\lambda - \kappa_\lambda) b_\lambda^\dagger + i \sum_\mu g_{\mu\lambda}^* (a_j^\dagger a_k) + F_\lambda^\dagger$$

$$\frac{d}{dt} (a_j^\dagger a_k) = (i\nu_{jk,\mu} - \gamma_{jk}) (a_j^\dagger a_k)_\mu - i \sum_\lambda g_{\mu\lambda} b_\lambda^\dagger (N_{j,\mu} - N_{k,\mu}) + \Gamma_{jk,\mu} \quad (5.144)$$

Les grandeurs F_λ^\dagger et $\Gamma_{jk,\mu}$ sont de nature stochastique. Afin de simplifier nos notations, nous choisissons $j = 2$ et $k = 1$. Nous ne retenons qu'un seul mode de champ électrique.

A l'approximation la plus basse :

$$(a_2^\dagger a_2 - a_1^\dagger a_1)_\mu^{(0)} = d_0 \quad (5.145)$$

où d_0 est encore l'inversion de populations non-saturée pour un atome (c'est-à-dire l'inversion sous l'action d'un pompage externe, mais sans action laser). Nous résolvons la

seconde équation du système (5.144) :

$$\left\{ \begin{array}{l} (a_2^\dagger a_1)_\mu^{(1)} = \frac{1}{\gamma - i\nu_\mu + \frac{d}{dt}} (-d_0 i g_\mu b^\dagger + \Gamma_{21,\mu}) \quad (\gamma \equiv \gamma_{21}) \\ = \frac{-i g_\mu d_0}{i(\Omega - \nu_\mu) + \gamma} b^\dagger + \frac{1}{\gamma - i\nu_\mu + \frac{d}{dt}} \Gamma_{21,\mu} \end{array} \right. \quad (5.146)$$

Pour la dérivation du dernier résultat, nous avons utilisé $b^\dagger(t) = \tilde{b}^\dagger(t) e^{i\Omega t}$ où Ω est la fréquence du mode de champ électrique dans la cavité chargée. Nous avons de même supposé que les fréquences inhérentes à \tilde{b} sont petites par rapport à γ . Nous reformulons les équations de Langevin pour les populations. Elles sont primordiales parce qu'elles tiennent compte des probabilités de transitions entre les niveaux (c'est-à-dire des processus de relaxation et de pompage). Nous ferons un choix dans le maintien des puissances de pompe et des pertes pour le système à trois niveaux électroniques que nous traiterons ultérieurement. Ces équations de populations s'écrivent :

Pour les niveaux laser,

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{d}{dt} (a_j^\dagger a_j)_\mu = \sum_{i \neq j} (a_i^\dagger a_i)_\mu w_{ij} - (a_j^\dagger a_j)_\mu \sum_{i \neq j} w_{ji} + i(a_k^\dagger a_j)_\mu \sum_\lambda g_{\mu\lambda} b_\lambda^\dagger - i(a_j^\dagger a_k)_\mu \sum_\lambda g_{\mu\lambda}^* b_\lambda + \Gamma_{jj,\mu} \\ \frac{d}{dt} (a_k^\dagger a_k)_\mu = \sum_{i \neq k} (a_i^\dagger a_i)_\mu w_{ik} - (a_k^\dagger a_k)_\mu \sum_{i \neq k} w_{ki} - i(a_k^\dagger a_j)_\mu \sum_\lambda g_{\mu\lambda} b_\lambda^\dagger + i(a_j^\dagger a_k)_\mu \sum_\lambda g_{\mu\lambda}^* b_\lambda + \Gamma_{kk,\mu} \end{array} \right. \quad (5.147)$$

Pour les niveaux non-laser,

$$\frac{d}{dt} (a_l^\dagger a_l)_\mu = \sum_{i \neq l} (a_i^\dagger a_i)_\mu w_{il} - (a_l^\dagger a_l)_\mu \sum_{i \neq l} w_{li} + \Gamma_{ll,\mu} \quad (5.148)$$

Les Γ sont des forces fluctuantes de nature stochastique.

En introduisant les résultats de (5.146) dans les équations de populations (5.147) et (5.148), cela nous conduit à un ensemble d'équations pour les éléments diagonaux $(a_k^\dagger a_k)$:

$$\frac{d}{dt} (a_j^\dagger a_j)_\mu - \sum_k w_{kj} (a_k^\dagger a_k)_\mu + \sum_k (a_j^\dagger a_j)_\mu w_{jk} = O_\mu (\delta_{1j} - \delta_{2j}) + \Gamma_{jj,\mu} \quad (5.149)$$

où

$$O_\mu = b^\dagger b |g_\mu|^2 \frac{2\gamma d_0}{\gamma^2 + (\Omega - \nu_\mu)^2} + (\text{termes de bruit}) \quad (5.150)$$

Une analyse détaillée a montré que les termes de bruit diagonaux $\Gamma_{jj,\mu}$ et les termes

de bruit apparaissant dans l'équation (5.150) peuvent être négligés dans la région du seuil de l'effet laser et même au-dessus. Pourvu que le temps de relaxation de l'inversion $(a_2^\dagger a_2 - a_1^\dagger a_1)$ soit court par rapport aux temps de fluctuation de $b^\dagger b$, nous pouvons poser $\frac{d}{dt}(a_j^\dagger a_j) = 0$ dans les équations (5.149). Aussi, ces dernières se réduisent à un système d'équations linéaires purement algébriques. Leur solution pour l'inversion s'écrit sous la forme :

$$(a_2^\dagger a_2 - a_1^\dagger a_1)_\mu = d_0 - Z_\mu b^\dagger b \quad (5.151)$$

où la constante Z_μ est donnée par :

$$Z_\mu = \frac{d_0 2\gamma |g_\mu|^2}{\gamma^2 + (\Omega - \nu_\mu)^2} Z' \quad (5.152)$$

Z' dépend seulement des probabilités de transition w_{ik} et est définie comme suit : le système de deux équations

$$\sum_k w_{kj} z_k - z_j \sum_k w_{jk} = -\delta_{j1} + \delta_{j2} \quad \sum_k z_k = 0 \quad (5.153)$$

doit être résolu pour les quantités inconnues z_j . Alors $Z' = z_2 - z_1$. En insérant (5.151) dans la seconde équation du système (5.144) et après intégration, nous obtenons une expression améliorée :

$$(a_2^\dagger a_1)_\mu = \frac{-i g_\mu d_0 b^\dagger}{i(\Omega - \nu_\mu) + \gamma} + \frac{i g_\mu |g_\mu|^2 d_0 2\gamma}{(\gamma^2 + (\Omega - \nu_\mu)^2)(i(\Omega - \nu_\mu) + \gamma)} Z' b^\dagger b b^\dagger + \frac{1}{\gamma - i\nu_\mu + \frac{d}{dt}} \Gamma_{21,\mu} \quad (5.154)$$

Nous insérons cet opérateur cohérence dans la première équation du système (5.144) et nous obtenons une équation pour les opérateurs mode du champ électrique b et b^\dagger :

$$\left\{ \begin{array}{l} \left\{ \frac{d}{dt} + i(\Omega - \omega) + \kappa - C \right\} \tilde{b}^\dagger + \beta \tilde{b}^\dagger \tilde{b} \tilde{b}^\dagger = \hat{F}_{tot}^\dagger \\ C = \sum_\mu |g_\mu|^2 d_0 \frac{1}{\gamma - i(\nu_\mu - \Omega)} \\ \beta = d_0 Z' \sum_\mu \frac{2|g_\mu|^4 \gamma}{(\gamma^2 + (\Omega - \nu_\mu)^2)(i(\Omega - \nu_\mu) + \gamma)} \\ e^{i\Omega t} \hat{F}_{tot}^\dagger = F^\dagger + i \sum_\mu g_\mu^* \frac{1}{\gamma - i\nu_\mu + \frac{d}{dt}} \Gamma_{21,\mu} \end{array} \right. \quad (5.155)$$

Nous avons encore une équation de van der Pol. La condition de l'effet laser est fournie

par $\{-\kappa + C \geq 0\}$. Elle se formule :

$$d_0 \geq \frac{\kappa}{\sum_{\mu} \frac{|g_{\mu}|^2}{\gamma - i(\nu_{\mu} - \Omega)}} \quad (5.156)$$

Si les quantités g et ν sont indépendantes de l'indice μ et $\nu = \Omega$, nous retrouvons la condition (5.91). L'équation de van der Pol donnée en (5.155) est équivalente à celle indiquée au (6.48) du livre [48]. L'obtention de cette dernière a été possible en exploitant une condition auto-consistante sur le mode de champ. A nouveau, il apparaît que la formulation semi-classique peut être dérivée à partir de celle totalement quantique sous les conditions d'annuler les variables stochastiques de bruits et de remplacer les opérateurs quantiques par les variables dynamiques classiques correspondantes.

Conclusion

Nous avons établi les équations du laser à état solide lorsqu'il comprend des atomes à deux niveaux électroniques. Nous avons traité les cas de description semi-classique et totalement quantique. Nous avons de plus établi ces mêmes équations du laser dans le cas où des atomes du matériau actif sont injectés dans la cavité (cela correspond à la situation traitée par Scully et al. dans le domaine de l'optique quantique).

Pour ces systèmes à deux niveaux électroniques, la résolution d'une équation « séculaire » issue d'un déterminant nul peut fournir la condition de seuil de l'effet laser. Néanmoins, nous avons aussi établi l'équation de van der Pol en la variable du mode du champ électrique. Nous commençons à entrevoir que cette équation peut fournir pareillement la condition de seuil recherchée. On cherchera à exploiter cette approche au chapitre (6) pour la configuration à trois niveaux électroniques d'énergie.

Nous avons démontré la concordance des conditions de seuil de l'effet laser établies pour :

1. un laser à état solide constitué d'atomes à deux niveaux électroniques d'énergie;
2. un laser dont les atomes sont injectés dans la cavité;
3. un laser à état solide dont nous avons établi la condition de seuil et les équations d'évolution selon une approche totalement quantique.

La démonstration de cette concordance est l'apport majeur de ce chapitre. Nous rappelons la condition de seuil de l'effet laser :

$$\boxed{D_0 > \frac{\kappa\gamma}{g^2}} \quad (5.157)$$

Nous établirons une condition de seuil généralisée pour un système à trois niveaux électroniques dans le chapitre suivant.

Glossaire pour le chapitre (5)

- \mathcal{A} Gain linéaire d'un laser à deux niveaux d'énergie
- D** Vecteur excitation électrique
- e Charge de l'électron sans le signe
- E** Valeur propre pour l'énergie
- H** Vecteur excitation magnétique
- N** Nombre d'atomes du matériau actif du laser à deux niveaux
- \hat{p} Opérateur moment dipolaire électrique
- \mathbf{p}_μ Vecteur moyenne du moment dipolaire électrique pour l'atome particulier indicé par μ
- $\mathbf{P}(\mathbf{x}, t)$ Vecteur polarisation
- \mathcal{P} Amplitude de la polarisation de la matière
- Q** Facteur qualité de la cavité
- R** Opérateur vecteur position ou la valeur propre de cet opérateur
- V_e Volume de la cavité
- W_j Énergie associé au ket propre $|\phi_j\rangle$
- w_{ij} Fréquence de transition entre les niveaux d'énergie indicés par i et j
- γ_a Taux de décroissance du niveau d'énergie libellé a
- γ_{ab} Taux d'amortissement associé à la cohérence entre les niveaux d'énergie libellés a et b
- κ Pertes de la cavité laser et non le temps d'émission spontanée du niveau excité e_g comme noté au chapitre (3)
- λ Indice du mode du champ électrique décrit dans une cavité résonnante (pour la partie fonction de la variable temps). Cette notation ne correspond pas dans ce chapitre à la longueur d'onde et est un indice plus général que celui indiquant un mode transverse d'un photon.
- ν_{jl} Pulsation de transition atomique entre les niveaux d'énergie indicés par j et l
- ρ Opérateur matrice densité (sans unité)
- $\tilde{\rho}$ Opérateur matrice de population (unité : m^{-3})
- σ Conductivité électronique
- Φ Phase de l'élément de matrice de l'opérateur moment dipolaire électrique
- Φ_p Potentiel scalaire sous-section (5.5.1)

ω_c Pulsation du mode de la cavité

$\bar{\omega}_\mu$ Pulsation de transition atomique entre les deux niveaux du système laser attachée
à un atome particulier indicé par μ

Chapitre 6

Le système à trois niveaux d'énergie

Sommaire

6.1 Équations du laser à état solide	125
6.1.1 Introduction des variables	126
6.1.2 Résolution de l'équation de Schrödinger	127
6.1.3 Processus de pompe et de relaxation pour les inversions de populations	130
6.1.4 Description des champs électriques	132
6.1.5 Équation de propagation pour la grandeur E_λ et formulation du vecteur polarisation	135
6.1.6 Application de l'approximation séculaire	136
6.1.7 Approximation de l'amplitude variant lentement	141
6.1.8 Partition de l'axe du temps en deux périodes	143
6.2 Proposition de dispositif expérimental	145
6.2.1 Descriptif de la figure (6.5)	145
6.2.2 Diagrammes énergétiques	145
6.2.3 Fonctionnement de la cavité en régime continu	147
6.3 En dessous du seuil de l'effet laser et début de solution	149
6.3.1 Estimations quantitatives des grandeurs de fonctionnement	149
6.3.2 Interprétation de la décohérence entre les deux sous-niveaux	151
6.3.3 La méthode de l'équation "séculaire"	153
6.4 Le système à trois niveaux selon Scully et al.	155
6.4.1 Seuil classique pour une population sans faisceau de cohérence	156
6.4.2 Seuil de l'effet laser lorsqu'un faisceau de cohérence opère	159
6.4.3 Applications numériques et interprétations	161

6.4.4	Une condition nécessaire sur les inversions de populations	163
6.4.5	Correction apportée à la probabilité de pompage et conclusions partielles	164
6.5	Une adaptation du calcul de H.Haken	168
6.5.1	Solutions pour les cohérences α_μ et β_μ	168
6.5.2	La condition de seuil de l'effet laser revisitée	170

Nous pourrions être questionné sur le fait que nous sommes parti d'une étude sur la spectroscopie du Ti :saphir et nous proposons dans le présent chapitre une étude de l'effet laser d'un système à trois niveaux électroniques. Quel est le lien sous-jacent?

La spectroscopie du Ti :saphir, telle que nous l'avons étudiée au chapitre (3), reposait en partie sur la configuration à deux niveaux électroniques notés e_g et t_{2g} . Nous avons cherché à être le plus exhaustif pour ce matériau en étudiant tous les processus d'émission. Il s'avère que, par la prise en compte d'un abaissement de symétrie, le champ cristallin du Ti :saphir n'est pas exactement octaédrique mais trigonal. Cela ouvre un nouveau champ des possibles.

L'idée qui est alors apparue était de pomper de façon cohérente entre les deux sous-niveaux proches (qui ne représentaient qu'un seul niveau avant l'abaissement de la symétrie du site du cation) afin de produire de nouveaux phénomènes. Nous nous sommes orienté rapidement vers une démonstration d'un effet laser sans inversion de populations. La présence de cet effet LWI (Lasing Without population Inversion) serait révélée par un abaissement du seuil de l'effet laser calculé dans la cavité contenant le Ti :saphir lorsque, corrélativement, nous irradiions ce matériau actif avec un champ électrique (en ondes progressives) infrarouge accordé avec l'énergie de séparation des deux sous-niveaux proches du Ti :saphir. Nous pourrions poser une nouvelle condition de seuil de l'effet laser dite généralisée à comparer à celle dégagée au chapitre (5). In fine, l'enjeu serait d'abaisser la puissance de pompage dans le matériau actif en Ti :saphir et réduire ainsi les problèmes thermiques de cette cavité pour une même puissance de sortie.

Il est à noter que le Ti :saphir est le matériau de prédilection pour les lasers de très hautes puissances crête en raison, pour partie, de ses remarquables propriétés thermiques et de sa très large bande passante en longueur d'onde (de 600 nm à 1000 nm). Notre idée d'exploiter une configuration à trois niveaux électroniques pourrait remettre dans la course à l'extraction des très hautes puissances d'autres cristaux dopés, bien que les propriétés thermiques et la tenue à l'endommagement de ceux-ci soient bien moins performantes que celles du Ti :saphir.

Notre contribution majeure est ici l'établissement des équations du laser à état so-

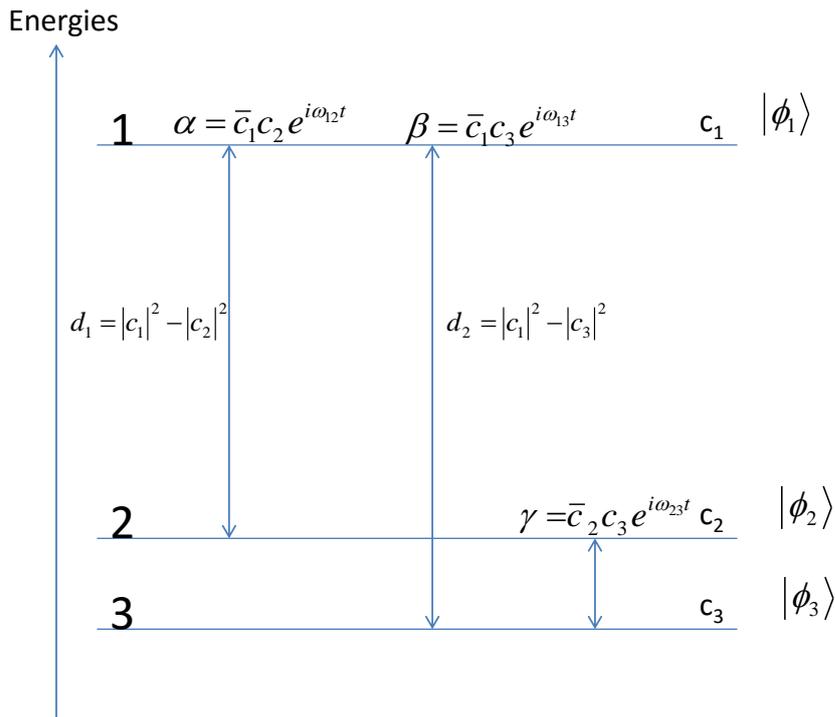


FIGURE 6.1 – Energies du système à trois niveaux et notations. Un champ électrique de nature infrarouge ou radiofréquence habille les niveaux 2 et 3. La transition laser dans le rouge a lieu entre les niveaux 1 et 2/3.

lide pour une configuration à trois niveaux électroniques d'énergie. Nous avons essayé de poser en outre l'équation de van der Pol en le mode du champ électrique de la cavité contenant le Ti :saphir, ce qui aurait permis de déduire la condition de seuil de l'effet laser généralisée. Cette équation de van der Pol aurait été démontrée dans le cadre relativement simple d'une théorie semi-classique; nous excluons l'option d'un traitement selon l'optique quantique où le champ des photons serait quantifié comme dans la section (5.5).

6.1 Équations du laser à état solide

Dans cette section qui voit l'établissement des équations du laser pour un cristal à trois niveaux électroniques d'énergie (pouvant être issus d'une symétrie trigonale), γ sans indice désignera bien sûr la cohérence entre les deux proches sous-niveaux. Nous avons défini la cohérence au chapitre (2) comme un élément de matrice (entre deux niveaux idoinés) non-diagonal de la matrice densité d'un atome isolé. Nous effectuons un traitement semi-classique pour établir ces équations.

6.1.1 Introduction des variables

Nous partons d'un système à trois niveaux électroniques comme précisé dans la figure (6.1). Nous détaillons les différentes hypothèses de notre modélisation. Nous exploitons l'approximation séculaire; elle autorise à négliger les termes anti-résonants devant ceux qualifiés de résonants. Nous utilisons de même l'approximation de l'enveloppe du champ électrique variant lentement. Ces deux approximations sont nécessaires dans le cadre de la méthode semi-classique.

Nous supposons que ce système ne présente pas de dégénérescence. Pour notre étude théorique, nous avons décidé de ne pas travailler directement sur la configuration d'un ion titane $3d^1$ dans une matrice comme le saphir. En effet, dans un tel cas, nous aurions du tenir compte complètement des cinq états associés à trois niveaux électroniques d'énergie présentant des dégénérescences. Aussi le formalisme de l'opérateur densité nous aurait imposé 14 variables indépendantes (quatre populations et 10 cohérences). Ce système de 14 équations aurait été très difficile à manipuler analytiquement. Nous n'avons donc retenu que trois niveaux non-dégénérés bien que cela soit une réelle limitation de notre modélisation. Mais nous espérons traduire et comprendre la nature des phénomènes sans en calculer les moindres détails avec la précision quantitative qui serait cependant nécessaire à la conception d'une expérience. Nous apporterons ultérieurement des éléments de design pour ces différents lasers à état solide.

L'Hamiltonien, comme dans le cas du système à deux niveaux, est décomposé en une partie non-perturbée H_0 qui est résolue (nous connaissons les valeurs des trois niveaux d'énergie W_j , $j = 1, \dots, 3$ ainsi que les trois fonctions d'onde ϕ_j , $j = 1, \dots, 3$) et une seconde partie correspondant à la perturbation. L'Hamiltonien de perturbation est choisi de nature dipolaire électrique qualifiée de résiduelle H^S :

$$H = H_0 + H^S \quad H_0 \phi_j = W_j \phi_j, \quad j = 1, \dots, 3 \quad H^S = e \mathbf{R} \cdot \mathbf{E}(t) \quad (6.1)$$

La fonction d'onde générale s'exprime selon un développement sur la base des fonctions $|\phi_j\rangle$:

$$|\Psi(t)\rangle = c_1 e^{-\frac{iW_1 t}{\hbar}} |\phi_1\rangle + c_2 e^{-\frac{iW_2 t}{\hbar}} |\phi_2\rangle + c_3 e^{-\frac{iW_3 t}{\hbar}} |\phi_3\rangle \quad (6.2)$$

Nous rappelons la notation $\theta_{jk} = \int \phi_j^* e \boldsymbol{\xi} \phi_k d^3 \boldsymbol{\xi}$. Elle est introduite au chapitre (5) (équation (5.38)) et désigne l'élément de matrice de l'opérateur moment dipolaire électrique entre les fonctions d'onde indexées par j et k . La moyenne de l'opérateur moment dipo-

laire électrique de l'atome se calcule :

$$\begin{aligned}
 \mathbf{p} &= \langle \Psi(t) | (-e)\boldsymbol{\xi} | \Psi(t) \rangle = \int \Psi^*(\boldsymbol{\xi}, t) (-e)\boldsymbol{\xi} \Psi(\boldsymbol{\xi}, t) d^3\xi \\
 -\mathbf{p} &= |c_1|^2 \boldsymbol{\theta}_{11} + c_1^* c_2 e^{\frac{+it}{\hbar}(W_1-W_2)} \boldsymbol{\theta}_{12} + c_1^* c_3 e^{\frac{+it}{\hbar}(W_1-W_3)} \boldsymbol{\theta}_{13} \\
 &+ c_2^* c_1 e^{\frac{+it}{\hbar}(W_2-W_1)} \boldsymbol{\theta}_{21} + |c_2|^2 \boldsymbol{\theta}_{22} + c_2^* c_3 e^{\frac{+it}{\hbar}(W_2-W_3)} \boldsymbol{\theta}_{23} \\
 &+ c_3^* c_1 e^{\frac{+it}{\hbar}(W_3-W_1)} \boldsymbol{\theta}_{31} + c_3^* c_2 e^{\frac{+it}{\hbar}(W_3-W_2)} \boldsymbol{\theta}_{32} + |c_3|^2 \boldsymbol{\theta}_{33}
 \end{aligned} \tag{6.3}$$

Nous supposons que $\boldsymbol{\theta}_{jj} = 0$, $j = 1, \dots, 3$. Cela signifie que notre matériau ne présente pas de moment dipolaire électrique statique (permanent). En raisonnant sur l'électron $3d^1$ du titane, celui-ci étant placé sur un site de symétrie approchée dite cubique ou octaédrique, les centres de symétrie des charges positives et négatives en statique sont confondus. Donc notre hypothèse, absence de moment dipolaire électrique statique, est plausible.

$$\begin{aligned}
 -\mathbf{p} &= c_1^* c_2 e^{\frac{+it}{\hbar}(W_1-W_2)} \boldsymbol{\theta}_{12} + c_1^* c_3 e^{\frac{+it}{\hbar}(W_1-W_3)} \boldsymbol{\theta}_{13} \\
 &+ c_2^* c_1 e^{\frac{+it}{\hbar}(W_2-W_1)} \boldsymbol{\theta}_{21} + c_2^* c_3 e^{\frac{+it}{\hbar}(W_2-W_3)} \boldsymbol{\theta}_{23} \\
 &+ c_3^* c_1 e^{\frac{+it}{\hbar}(W_3-W_1)} \boldsymbol{\theta}_{31} + c_3^* c_2 e^{\frac{+it}{\hbar}(W_3-W_2)} \boldsymbol{\theta}_{32}
 \end{aligned} \tag{6.4}$$

Nous disposons d'un système avec trois cohérences et deux populations (ou inversions de populations), soit un total de cinq variables indépendantes décrivant la matière. Nous rajoutons une variable de mode temporel du champ électrique de l'effet laser (mode issu de la formulation en ondes stationnaires), décrite par une équation de propagation. Les cohérences sont des nombres complexes alors que les inversions de populations sont bien des nombres réels. Le vecteur polarisation du milieu couple les équations de la matière avec celle dite de propagation du mode temporel du champ électrique. Nous venons de définir l'ensemble des variables pour notre problème.

6.1.2 Résolution de l'équation de Schrödinger

Nous résolvons l'équation de Schrödinger par la méthode des amplitudes de probabilités comme déjà effectuée pour le calcul du système à deux niveaux :

$$H|\psi\rangle = i\hbar \frac{d}{dt} |\psi\rangle \tag{6.5}$$

Nous injectons l'équation (6.2) dans l'équation précédente, tout en considérant la définition des Hamiltoniens donnée en (6.1) :

$$\begin{aligned}
c_1 e^{-\frac{iW_1 t}{\hbar}} W_1 |\phi_1\rangle + c_1 e^{-\frac{iW_1 t}{\hbar}} e^{\mathbf{\xi} \cdot \mathbf{E}(t)} |\phi_1\rangle + c_2 e^{-\frac{iW_2 t}{\hbar}} W_2 |\phi_2\rangle + c_2 e^{-\frac{iW_2 t}{\hbar}} e^{\mathbf{\xi} \cdot \mathbf{E}(t)} |\phi_2\rangle + \\
+ c_3 e^{-\frac{iW_3 t}{\hbar}} W_3 |\phi_3\rangle + c_3 e^{-\frac{iW_3 t}{\hbar}} e^{\mathbf{\xi} \cdot \mathbf{E}(t)} |\phi_3\rangle = \\
i\hbar \left\{ \dot{c}_1 e^{-\frac{iW_1 t}{\hbar}} |\phi_1\rangle - \frac{iW_1}{\hbar} c_1 e^{-\frac{iW_1 t}{\hbar}} |\phi_1\rangle + \dot{c}_2 e^{-\frac{iW_2 t}{\hbar}} |\phi_2\rangle - \frac{iW_2}{\hbar} c_2 e^{-\frac{iW_2 t}{\hbar}} |\phi_2\rangle \right\} + \\
+ i\hbar \left\{ \dot{c}_3 e^{-\frac{iW_3 t}{\hbar}} |\phi_3\rangle - \frac{iW_3}{\hbar} c_3 e^{-\frac{iW_3 t}{\hbar}} |\phi_3\rangle \right\} \quad (6.6)
\end{aligned}$$

Nous multiplions l'équation précédente par le bra $\langle \phi_1 |$:

$$\begin{aligned}
c_1 e^{-\frac{iW_1 t}{\hbar}} W_1 + c_1 e^{-\frac{iW_1 t}{\hbar}} \boldsymbol{\theta}_{11} \cdot \mathbf{E}(t) + c_2 e^{-\frac{iW_2 t}{\hbar}} \boldsymbol{\theta}_{12} \cdot \mathbf{E}(t) + c_3 e^{-\frac{iW_3 t}{\hbar}} \boldsymbol{\theta}_{13} \cdot \mathbf{E}(t) = \\
i\hbar \dot{c}_1 e^{-\frac{iW_1 t}{\hbar}} + W_1 c_1 e^{-\frac{iW_1 t}{\hbar}} \quad (6.7)
\end{aligned}$$

Nous obtenons une équation pour \dot{c}_1 (par hypothèse $\boldsymbol{\theta}_{11} = 0$) :

$$\dot{c}_1 = \frac{1}{i\hbar} \left\{ c_2 e^{\frac{i(W_1 - W_2)t}{\hbar}} \boldsymbol{\theta}_{12} \cdot \mathbf{E}(t) + c_3 e^{\frac{i(W_1 - W_3)t}{\hbar}} \boldsymbol{\theta}_{13} \cdot \mathbf{E}(t) \right\} \quad (6.8)$$

Nous multiplions l'équation (6.6) respectivement par les bras $\langle \phi_2 |$ et $\langle \phi_3 |$ et en tenant compte des relations $\boldsymbol{\theta}_{22} = \boldsymbol{\theta}_{33} = 0$, nous posons :

$$\dot{c}_2 = \frac{1}{i\hbar} \left\{ c_1 e^{\frac{i(W_2 - W_1)t}{\hbar}} \boldsymbol{\theta}_{21} \cdot \mathbf{E}(t) + c_3 e^{\frac{i(W_2 - W_3)t}{\hbar}} \boldsymbol{\theta}_{23} \cdot \mathbf{E}(t) \right\} \quad (6.9)$$

$$\dot{c}_3 = \frac{1}{i\hbar} \left\{ c_1 e^{\frac{i(W_3 - W_1)t}{\hbar}} \boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \mathbf{E}(t) + c_2 e^{\frac{i(W_3 - W_2)t}{\hbar}} \boldsymbol{\theta}_{32} \cdot \mathbf{E}(t) \right\} \quad (6.10)$$

Nous définissons nos variables :

$$\left\{ \begin{array}{l} \alpha(t) = c_1^* c_2 e^{+it\omega_{12}} \text{ où } \omega_{12} = \frac{W_1 - W_2}{\hbar} \\ \beta(t) = c_1^* c_3 e^{+it\omega_{13}} \text{ où } \omega_{13} = \frac{W_1 - W_3}{\hbar} \\ \gamma(t) = c_2^* c_3 e^{+it\omega_{23}} \text{ où } \omega_{23} = \frac{W_2 - W_3}{\hbar} \\ d_1 = |c_1|^2 - |c_2|^2 \\ d_2 = |c_1|^2 - |c_3|^2 \end{array} \right. \quad (6.11)$$

Nous dérivons la première cohérence $\alpha(t)$ par rapport au temps :

$$\begin{aligned}
\dot{\alpha}(t) &= c_1^* c_2 e^{+it\omega_{12}} (i\omega_{12}) + \dot{c}_1^* c_2 e^{+it\omega_{12}} + c_1^* \dot{c}_2 e^{+it\omega_{12}} \\
&= \alpha(t)(i\omega_{12}) + \frac{i}{\hbar} \left\{ c_2^* e^{-i\omega_{12}t} \boldsymbol{\theta}_{12}^* \cdot \mathbf{E}(t) + c_3^* e^{-i\omega_{13}t} \boldsymbol{\theta}_{13}^* \cdot \mathbf{E}(t) \right\} c_2 e^{+it\omega_{12}} + \\
&\quad + c_1^* \frac{1}{i\hbar} \left\{ c_1 e^{-i\omega_{12}t} \boldsymbol{\theta}_{21} \cdot \mathbf{E}(t) + c_3 e^{i\omega_{23}t} \boldsymbol{\theta}_{23} \cdot \mathbf{E}(t) \right\} e^{+it\omega_{12}} \\
&= \alpha(t)(i\omega_{12}) + \frac{i}{\hbar} |c_2|^2 \boldsymbol{\theta}_{12}^* \cdot \mathbf{E} + \frac{i}{\hbar} \gamma^* \boldsymbol{\theta}_{13}^* \cdot \mathbf{E} + \frac{1}{i\hbar} |c_1|^2 \boldsymbol{\theta}_{21} \cdot \mathbf{E} + \frac{1}{i\hbar} \beta \boldsymbol{\theta}_{23} \cdot \mathbf{E} \\
&= i\omega_{12}\alpha(t) + \frac{1}{i\hbar} d_1 \boldsymbol{\theta}_{21} \cdot \mathbf{E} + \frac{1}{i\hbar} \beta \boldsymbol{\theta}_{23} \cdot \mathbf{E} - \frac{1}{i\hbar} \gamma^* \boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \mathbf{E} \quad (6.12)
\end{aligned}$$

L'équation d'évolution de la cohérence (élément de matrice non-diagonal) pour l'opérateur matrice densité s'évalue :

$$\dot{\rho}_{nm} = \underbrace{-i\hbar^{-1}[\mathbf{H}, \rho]_{nm}}_{\text{Partie cohérente déjà évaluée}} - \Gamma_{nm}\rho_{nm} \quad (6.13)$$

Nous complétons l'équation (6.12). En définitif, nous établissons :

$$\boxed{\dot{\alpha}(t) = (i\omega_{12} - \Gamma_{12})\alpha(t) + \frac{1}{i\hbar} d_1 \boldsymbol{\theta}_{21} \cdot \mathbf{E} + \frac{1}{i\hbar} \beta \boldsymbol{\theta}_{23} \cdot \mathbf{E} - \frac{1}{i\hbar} \gamma^* \boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \mathbf{E}} \quad (6.14)$$

De manière similaire, nous obtenons les formules pour les autres cohérences :

$$\boxed{\dot{\beta}(t) = (i\omega_{13} - \Gamma_{13})\beta(t) + \frac{1}{i\hbar} d_2 \boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \mathbf{E} + \frac{1}{i\hbar} \alpha \boldsymbol{\theta}_{32} \cdot \mathbf{E} - \frac{1}{i\hbar} \gamma \boldsymbol{\theta}_{21} \cdot \mathbf{E}} \quad (6.15)$$

$$\boxed{\dot{\gamma}(t) = (i\omega_{23} - \Gamma_{23})\gamma(t) + \frac{1}{i\hbar} \boldsymbol{\theta}_{32} \cdot \mathbf{E}(d_2 - d_1) + \frac{1}{i\hbar} \alpha^* \boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \mathbf{E} - \frac{1}{i\hbar} \beta \boldsymbol{\theta}_{12} \cdot \mathbf{E}} \quad (6.16)$$

L'équation d'évolution de la population pour l'opérateur matrice densité s'évalue par contre :

$$\dot{\rho}_{nn} = \underbrace{-i\hbar^{-1}[\mathbf{H}, \rho]_{nn}}_{\text{Partie cohérente évaluée en premier}} + \sum_{E_m > E_n} \frac{1}{\Gamma_{nm}} \rho_{mm} - \sum_{E_m < E_n} \frac{1}{\Gamma_{mn}} \rho_{nn} \quad (6.17)$$

Un calcul similaire à ceux effectués pour les variables cohérences donne les dérivées des inversions de populations d_1 et d_2 pour leurs parties cohérentes (c'est-à-dire fonction du champ électrique) :

$$\dot{d}_1 = \frac{2}{i\hbar} \mathbf{E} \cdot (\alpha \boldsymbol{\theta}_{12} - \alpha^* \boldsymbol{\theta}_{21}) + \frac{1}{i\hbar} \mathbf{E} \cdot (\beta \boldsymbol{\theta}_{13} - \beta^* \boldsymbol{\theta}_{31}) + \frac{1}{i\hbar} \mathbf{E} \cdot (\gamma^* \boldsymbol{\theta}_{32} - \gamma \boldsymbol{\theta}_{23}) \quad (6.18)$$

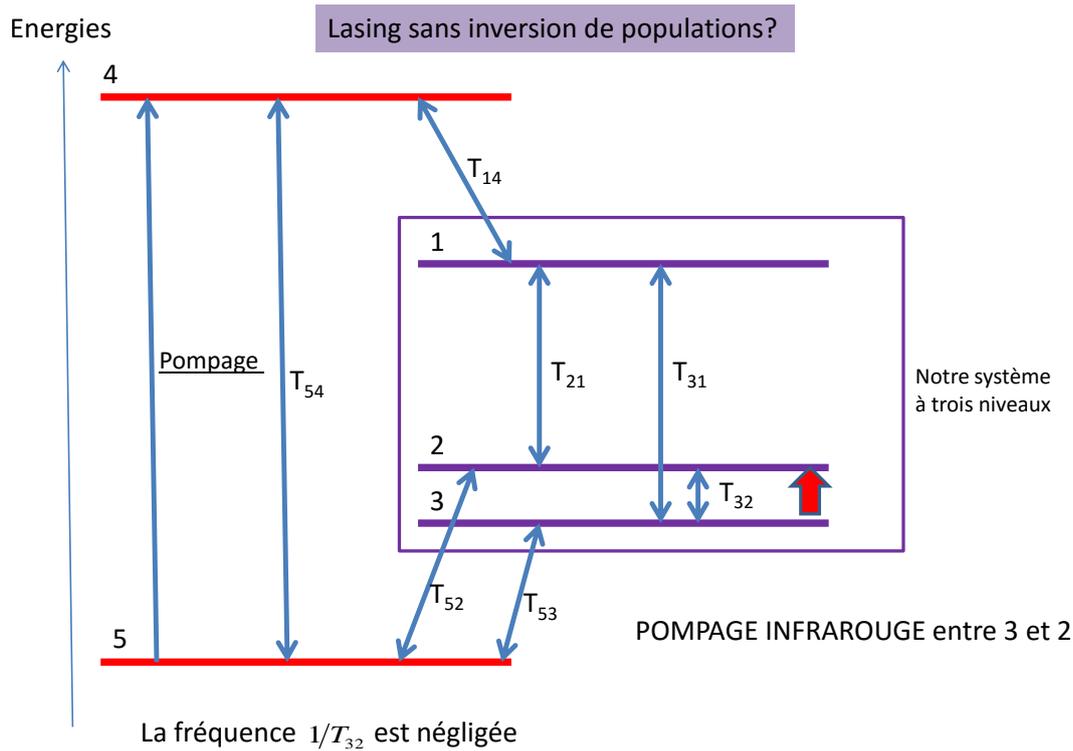


FIGURE 6.2 – Pompe et relaxations pour les inversions de populations.

$$\dot{d}_2 = \frac{2}{i\hbar} \mathbf{E} \cdot (\beta \boldsymbol{\theta}_{13} - \beta^* \boldsymbol{\theta}_{31}) + \frac{1}{i\hbar} \mathbf{E} \cdot (\alpha \boldsymbol{\theta}_{12} - \alpha^* \boldsymbol{\theta}_{21}) + \frac{1}{i\hbar} \mathbf{E} \cdot (\gamma \boldsymbol{\theta}_{23} - \gamma^* \boldsymbol{\theta}_{32}) \quad (6.19)$$

6.1.3 Processus de pompe et de relaxation pour les inversions de populations

Nous avons mené le présent traitement afin d'introduire un minimum de variables (ici un seul temps T_r pour la relaxation de Bloch des deux inversions de populations à partir de leurs valeurs non-saturées) pour la description des processus en question.

Nous considérons un système fermé à 5 niveaux comme précisé dans la figure (6.2). Les deux sous-niveaux 2 et 3 sont très proches l'un de l'autre. Nous retrouvons le schéma du système à quatre niveaux d'énergie du chapitre (4). La prise en compte de la partie cohérente (fonction du champ électrique) des populations dans l'équation (6.17) nous fournit les formulations des inversions de populations telles que données dans (6.18) et (6.19). Maintenant, nous incluons dans notre modélisation l'ensemble des processus de pompage et de relaxation appliqués à ce système à 5 niveaux. Nous ne considérons provisoirement que ces processus dans les équations d'évolution des populations données ci-dessous.

Nous gagnons le système d'équations d'évolution des populations :

$$\dot{\rho}_{44} = +\mathcal{P}\rho_{55} - \frac{1}{T_{54}}\rho_{44} - \frac{1}{T_{14}}\rho_{44} \quad (6.20)$$

$$\dot{\rho}_{11} = +\frac{1}{T_{14}}\rho_{44} - \frac{1}{T_{21}}\rho_{11} - \frac{1}{T_{31}}\rho_{11} \quad (6.21)$$

$$\dot{\rho}_{22} = +\frac{1}{T_{21}}\rho_{11} - \frac{1}{T_{32}}\rho_{22} - \frac{1}{T_{52}}\rho_{22} \quad (6.22)$$

$$\dot{\rho}_{33} = +\frac{1}{T_{31}}\rho_{11} + \frac{1}{T_{32}}\rho_{22} - \frac{1}{T_{53}}\rho_{33} \quad (6.23)$$

$$\dot{\rho}_{55} = -\mathcal{P}\rho_{55} + \frac{1}{T_{54}}\rho_{44} + \frac{1}{T_{52}}\rho_{22} + \frac{1}{T_{53}}\rho_{33} \quad (6.24)$$

\mathcal{P} est la puissance de pompage du niveau 5 vers le niveau 4. Nous négligeons la fréquence $\frac{1}{T_{32}}$ devant les autres; c'est l'absence supposée de transfert de populations entre les niveaux 2 et 3 autres que ceux engendrés par les variables de cohérences qui permet de poser cette approximation. Nous postulons les égalités $T_{31} = T_{21} = T$ et $T_{52} = T_{53} = T_0$. Nous modifions les équations précédentes :

$$\dot{\rho}_{11} = +\frac{1}{T_{14}}\rho_{44} - \frac{2}{T}\rho_{11} \quad (6.25)$$

$$\dot{\rho}_{22} = +\frac{1}{T}\rho_{11} - \frac{1}{T_0}\rho_{22} \quad (6.26)$$

$$\dot{\rho}_{33} = +\frac{1}{T}\rho_{11} - \frac{1}{T_0}\rho_{33} \quad (6.27)$$

Les dérivées des inversions s'évaluent alors :

$$\begin{aligned} \dot{d}_1 &= +\frac{1}{T_{14}}\rho_{44} - \frac{3}{T}d_1 + \left(\frac{1}{T_0} - \frac{3}{T}\right)\rho_{22} \\ \dot{d}_2 &= +\frac{1}{T_{14}}\rho_{44} - \frac{3}{T}d_2 + \left(\frac{1}{T_0} - \frac{3}{T}\right)\rho_{33} \end{aligned} \quad (6.28)$$

Ces deux équations d'évolution sont similaires. Pour la première nous avons les quantités $(d_1; \rho_{22})$ et pour la seconde les quantités correspondantes termes à termes $(d_2; \rho_{33})$. Le terme $+\frac{1}{T_{14}}\rho_{44}$ décrit le pompage et une partie des phénomènes de relaxation. Nous raisonnons sur le système à trois niveaux 1,2 et 3. Ce système est dit ouvert parce qu'il est relation avec des processus de pompage et de relaxation extérieurs. De tels processus de relaxation et de pompage peuvent être décrits respectivement par des temps (ou fréquences de transition) et deux inversions de populations dites non-saturées d_{01} et d_{02} . Dans la première équation de (6.28), nous voyons apparaître la grandeur ρ_{22} qui entre dans la définition de d_1 et non de d_2 . Nous choisissons donc d'exprimer l'équation d'évo-

lution de d_1 comme suit :

$$\dot{d}_1 = \frac{d_{01} - d_1}{T_r} \quad (6.29)$$

De la même manière, nous formulons pour d_2

$$\dot{d}_2 = \frac{d_{02} - d_2}{T_r} \quad (6.30)$$

Nous pourrions en outre évoquer l'indépendance des variables d_1 et d_2 et exclure des "mélanges" quant aux processus de relaxation et de pompage, mais nous pensons que la similitude des équations (6.28) et l'absence supposée de transfert de populations entre les niveaux 2 et 3 fondent les deux équations (6.29) et (6.30).

Avec l'introduction des uniques quantités d_{01} , d_{02} et T_r , nous sommes en mesure de rendre compte et de simuler un ensemble de phénomènes de relaxation et de pompage. Nous aurions pu adopter néanmoins une autre modélisation de ces phénomènes (avec par exemple deux constantes de temps T_r , une pour chaque inversion de populations), mais elle aurait complexifié notre tâche sans pour autant être plus expressive.

En définitive, nous obtenons le système provisoire et très important d'équations décrivant la matière : les équations de la matière pour notre laser à état solide.

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\alpha}(t) = (i\omega_{12} - \Gamma_{12})\alpha(t) + \frac{1}{i\hbar} d_1 \boldsymbol{\theta}_{21} \cdot \mathbf{E} + \frac{1}{i\hbar} \beta \boldsymbol{\theta}_{23} \cdot \mathbf{E} - \frac{1}{i\hbar} \gamma^* \boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \mathbf{E} \\ \dot{\beta}(t) = (i\omega_{13} - \Gamma_{13})\beta(t) + \frac{1}{i\hbar} d_2 \boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \mathbf{E} + \frac{1}{i\hbar} \alpha \boldsymbol{\theta}_{32} \cdot \mathbf{E} - \frac{1}{i\hbar} \gamma \boldsymbol{\theta}_{21} \cdot \mathbf{E} \\ \dot{\gamma}(t) = (i\omega_{23} - \Gamma_{23})\gamma(t) + \frac{1}{i\hbar} \boldsymbol{\theta}_{32} \cdot \mathbf{E} (d_2 - d_1) + \frac{1}{i\hbar} \alpha^* \boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \mathbf{E} - \frac{1}{i\hbar} \beta \boldsymbol{\theta}_{12} \cdot \mathbf{E} \\ \dot{d}_1 = \frac{d_{01} - d_1}{T_r} + \frac{2}{i\hbar} \mathbf{E} \cdot (\alpha \boldsymbol{\theta}_{12} - \alpha^* \boldsymbol{\theta}_{21}) + \frac{1}{i\hbar} \mathbf{E} \cdot (\beta \boldsymbol{\theta}_{13} - \beta^* \boldsymbol{\theta}_{31}) + \frac{1}{i\hbar} \mathbf{E} \cdot (\gamma^* \boldsymbol{\theta}_{32} - \gamma \boldsymbol{\theta}_{23}) \\ \dot{d}_2 = \frac{d_{02} - d_2}{T_r} + \frac{2}{i\hbar} \mathbf{E} \cdot (\beta \boldsymbol{\theta}_{13} - \beta^* \boldsymbol{\theta}_{31}) + \frac{1}{i\hbar} \mathbf{E} \cdot (\alpha \boldsymbol{\theta}_{12} - \alpha^* \boldsymbol{\theta}_{21}) + \frac{1}{i\hbar} \mathbf{E} \cdot (\gamma \boldsymbol{\theta}_{23} - \gamma^* \boldsymbol{\theta}_{32}) \end{array} \right. \quad (6.31)$$

Nous allons maintenant définir les différents champs électriques.

6.1.4 Description des champs électriques

Nous introduisons l'indice μ pour noter un atome en particulier. Dans les équations (6.31), le champ électrique prend la notation $\mathbf{E}_{tot}(\mathbf{x}_\mu, t)$. Les quantités d_{01} et d_{02} sont indépendantes de l'indice μ . Le champ électrique total sera la somme d'un champ laser,

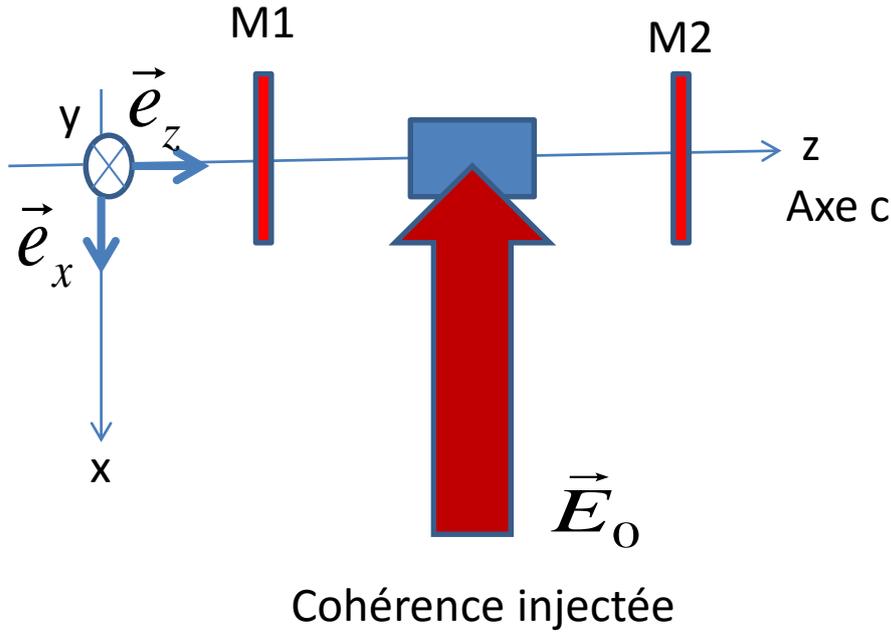


FIGURE 6.3 – Configuration à trois niveaux. Définition du repère pour les champs électriques.

généralisé dans la cavité du laser à état solide, noté \mathbf{E} et d'un autre champ électrique noté \mathbf{E}_0 , produit à la sortie d'un laser infrarouge dit d'injection de cohérence entre les niveaux 2 et 3. Ce champ, qui injecte de la cohérence et qui pourra aussi être de nature radiofréquence, "habille" les deux sous-niveaux proches 2 et 3. Nous précisons ces champs électriques sur la figure (6.3).

6.1.4.1 Le champ électrique \mathbf{E} de la cavité du laser à état solide

Nous supposons une cavité dont la longueur est associée à l'axe z (axe c du barreau de matériau actif). Le champ électrique décrivant l'effet laser se développe selon les ondes stationnaires :

$$\mathbf{E}(\mathbf{x}, t) = \sum_{\lambda} E_{\lambda}(t) \mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}) \quad (6.32)$$

λ indexe les modes du champ électrique. $\mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x})$ décrit la partie spatiale et nous choisissons une base réelle de vecteurs de polarisation linéaire orthogonaux à l'axe z associée à une telle partie. Le vecteur $\mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x})$ est colinéaire au vecteur unitaire \mathbf{e}_{λ} de la base choisie. Nous avons la formule :

$$\Delta \mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}) = -k_{\lambda}^2 \mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}) = -\frac{\omega_{\lambda}^2}{c^2} \mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}) \quad (6.33)$$

Malgré les ouvertures sur les côtés de la cavité, nous supposons que les $\mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x})$ forment une base orthonormée indexée par λ :

$$\int \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}) \mathbf{u}_{\lambda'}(\mathbf{x}) d^3x = \delta_{\lambda\lambda'} \quad (6.34)$$

Les quantités $E_\lambda(t)$ constituent des variables de notre modélisation.

6.1.4.2 Le champ électrique \mathbf{E}_0 du laser d'injection de cohérence

Nous disposons d'un laser dit d'injection de cohérence émettant à des longueurs d'onde infrarouge ou radiofréquence. La longueur d'onde correspond à l'énergie de séparation entre les deux proches sous-niveaux 2 et 3 du Ti :saphir est environ 17 μm . Ce laser sera supposé émettre en continu à une puissance au plus de P . Mais le cas où il fonctionnerait en régime impulsionnel sera évoqué à la fin de l'exposé. Le faisceau du laser a une section droite S . La densité d'énergie volumique s'exprime alors :

$$w = \epsilon_0 \frac{\mathcal{E}_0^2}{2} = \frac{P}{Sc} \quad (6.35)$$

Le champ électrique est propagé par une onde progressive. Comme établi en [49], en supposant que cette dernière obéit aux caractéristiques d'un profil gaussien (en particulier un profil transversal), le waist $w(x)$ le long de l'axe de propagation (repéré par l'axe (Ox)) suit la formule :

$$w(x) = w_0 \cdot \sqrt{1 + \left(\frac{x}{Z_R}\right)^2} \quad (6.36)$$

w_0 est le waist minimum que nous prenons égal au diamètre du faisceau de l'ordre du millimètre. Alors la longueur de Rayleigh s'exprime par :

$$Z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (6.37)$$

Z_R est évaluée à environ 20 cm. Si nous plaçons la sortie du laser infrarouge perpendiculairement à l'axe z de la cavité du laser à état solide selon une distance d'au plus 20 cm, l'évolution du waist du champ \mathbf{E}_0 à l'intersection avec l'axe (Oz) sur le diamètre de l'échantillon d'au plus 0.56 mm est quasi-constante. Nous estimons que l'amplitude du champ \mathbf{E}_0 est constante sur tout le matériau actif du laser à état solide placé dans la cavité.

Nous admettons que le champ électrique \mathbf{E}_0 est polarisé linéairement selon l'axe (Oz) : selon le vecteur unitaire \mathbf{e}_z . Nous formulons de manière synthétique nos hypothèses par : $\mathbf{E}_0 = \mathcal{E}_0 \cdot \cos(\omega t + kx + \phi) \cdot \mathbf{e}_z$. Nous posons que la fréquence de ce champ est accordée

avec la pulsation ω_{23} . Nous le scindons en ses parties négative et positive

$$\mathbf{E}_0(\mathbf{x}_\mu, t) = \mathbf{E}_0^{(+)} + \mathbf{E}_0^{(-)} = \frac{\mathcal{E}_0}{2} e^{-i\omega_{23}t} \cdot e^{-i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{x}_\mu + \phi)} \cdot \mathbf{e}_z + \frac{\mathcal{E}_0}{2} e^{i\omega_{23}t} \cdot e^{i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{x}_\mu + \phi)} \cdot \mathbf{e}_z \quad (6.38)$$

Nous rappelons que \mathbf{x}_μ désigne le vecteur position de l'atome individualisé par l'indice μ .

Nous reconnaissons que la base de vecteurs construite $\{\mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}); \mathbf{e}_z\}$ autorise l'orthogonalité deux à deux de ceux-ci. Nous avons voulu découpler les variables $E_\lambda(t)$ et la constante $\mathbf{E}_0(\mathbf{x}_\mu, t)$.

Le champ électrique total est $\mathbf{E}_{tot}(\mathbf{x}_\mu, t) = \mathbf{E} + \mathbf{E}_0$ au point (\mathbf{x}_μ, t) .

6.1.5 Équation de propagation pour la grandeur E_λ et formulation du vecteur polarisation

Le champ électrique total vérifie l'équation de propagation issue du formalisme des équations de Maxwell (équation (5.58) du chapitre (5)) :

$$\Delta \mathbf{E}_{tot} - \frac{1}{c^2} \ddot{\mathbf{E}}_{tot} - \mu_0 \sigma \dot{\mathbf{E}}_{tot} = \mu_0 \ddot{\mathbf{P}} \quad (6.39)$$

Nous insérons les expressions pour \mathbf{E} et \mathbf{E}_0 telles que définies dans (6.1.4.1) et (6.1.4.2) et nous multiplions par \mathbf{u}_λ . Il en résulte que \mathbf{E}_0 est annulé. Nous intégrons ensuite sur le volume de la cavité du laser à état solide afin d'obtenir l'équation familière d'un mode temporel du champ électrique de l'effet laser dans la cavité à état solide. C'est l'équation de l'une des variables de notre problème, alors que le champ d'injection de cohérence (qui habille les deux sous-niveaux proches) est parfaitement connu. L'équation (6.39) se modifie :

$$\omega_\lambda^2 E_\lambda + \ddot{E}_\lambda + \frac{\sigma}{\epsilon_0} \dot{E}_\lambda = -\frac{1}{\epsilon_0} \ddot{P}_\lambda \quad (6.40)$$

Nous indiquons que λ indice ici le mode considéré et ne doit pas être confondu avec la notation de la longueur d'onde. Nous pensons que la confusion est facile à dissiper au regard du contexte.

Nous définissons le vecteur polarisation à partir du moment dipolaire électrique de l'atome \mathbf{p}_μ donné par l'équation (6.4) :

$$\mathbf{P}(\mathbf{x}, t) = \sum_{\mu} \delta(\mathbf{x} - \mathbf{x}_\mu) \mathbf{p}_\mu \quad (6.41)$$

et la grandeur $P_\lambda(t)$ est définie comme suit :

$$P_\lambda(t) = \int \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}) \mathbf{P}(\mathbf{x}, t) d^3 \mathbf{x} \quad (6.42)$$

En insérant (6.41) dans cette dernière équation et exploitant l'équation (6.4), nous calculons :

$$P_\lambda(t) = - \sum_{\mu} \{ \alpha_{\mu}(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_{\mu}) \boldsymbol{\theta}_{12} + \beta_{\mu}(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_{\mu}) \boldsymbol{\theta}_{13} + \alpha_{\mu}^*(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_{\mu}) \boldsymbol{\theta}_{21} + \\ + \gamma_{\mu}(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_{\mu}) \boldsymbol{\theta}_{23} + \beta_{\mu}^*(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_{\mu}) \boldsymbol{\theta}_{31} + \gamma_{\mu}^*(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_{\mu}) \boldsymbol{\theta}_{32} \} \quad (6.43)$$

Les trois cohérences entrant dans la définition de $P_\lambda(t)$ dépendent du champ électrique total, donc pour partie de $\mathbf{E}_0(\mathbf{x}_{\mu}, t)$. Aussi la variable $E_\lambda(t)$ dépend bien du champ de cohérence infrarouge ou radiofréquence. L'application de l'approximation séculaire permettra de séparer les contributions des deux types de champs électriques.

6.1.6 Application de l'approximation séculaire

C'est une approximation fondamentale que nous avons déjà faite pour le système à deux niveaux. En anglais, elle est dénommée rotating wave approximation. Elle consiste entre autres à négliger les termes anti-résonnants devant ceux qualifiés de résonnants.

Nous décomposons les champs électriques en leurs parties de fréquences positive et négative. Nous l'avons déjà réalisé pour le champ $\mathbf{E}_0(\mathbf{x}_{\mu}, t)$. Nous l'opérons aussi pour le mode du champ électrique de l'effet laser dans la cavité à état solide. Nous définissons donc pour $E_\lambda(t)$:

$$E_\lambda(t) = E_\lambda^{(+)}(t) + E_\lambda^{(-)}(t) = A_\lambda(t) \exp(i\omega_\lambda t) + A_\lambda^*(t) \exp(-i\omega_\lambda t) \quad (6.44)$$

Enfin nous ne retenons qu'un seul mode laser pour le champ électrique dans la cavité à état solide.

Nous multiplions l'équation de cohérence pour $\alpha_{\mu}(t)$ par $\exp(-it\omega_{12})$ (première équation du système (6.31)). L'expression est alors lentement variable. Raisonnons sur le terme $\frac{1}{i\hbar} d_{1\mu} \boldsymbol{\theta}_{21} \mathbf{E}_{tot} \cdot \exp(-it\omega_{12})$. L'inversion de populations $d_{1\mu}$ est lentement variable. ω_λ sera

accordée à la pulsation $\omega_{1-2,3} = \bar{\omega}$ qui approche les deux pulsations ω_{12} et ω_{13} .

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}_0 \cdot \exp(-it\omega_{12}) &\propto \underbrace{\exp i(\pm\omega_{23} - \omega_{12})t}_{\text{Terme oscillant}} \\
\sum_{\lambda} \mathbf{E}_{\lambda}^{(-)}(t) \cdot \exp(-it\omega_{12}) &\propto \underbrace{\exp i(-\omega_{\lambda} - \omega_{12})t}_{\text{Terme oscillant}} \\
\sum_{\lambda} \mathbf{E}_{\lambda}^{(+)}(t) \cdot \exp(-it\omega_{12}) &\propto \underbrace{\exp i(+\omega_{\lambda} - \omega_{12})t}_{\text{Terme séculaire}}
\end{aligned} \tag{6.45}$$

Nous avons donc l'approximation :

$$\frac{1}{i\hbar} d_{1\mu} \boldsymbol{\theta}_{21} \cdot \mathbf{E}_{tot} \cong \frac{1}{i\hbar} d_{1\mu} \boldsymbol{\theta}_{21} \cdot \left(\sum_{\lambda} \mathbf{E}_{\lambda}^{(+)}(t) \mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}_{\mu}) \right) \tag{6.46}$$

Nous ne retenons qu'un seul mode de l'effet laser pour le champ électrique dans la cavité.

Nous exprimons alors le résultat précédent :

$$\frac{1}{i\hbar} d_{1\mu} \boldsymbol{\theta}_{21} \cdot \mathbf{E}_{tot} \cong \frac{1}{i\hbar} d_{1\mu} \boldsymbol{\theta}_{21} \cdot \left(\mathbf{E}_{\lambda}^{(+)}(t) \mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}_{\mu}) \right) \tag{6.47}$$

Évaluons l'expression $\frac{1}{i\hbar} \beta_{\mu}(t) \boldsymbol{\theta}_{23} \cdot \mathbf{E}_{tot}$.

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}_0^{(+)} \cdot \exp(-it\omega_{12}) \beta_{\mu}(t) &\propto \underbrace{\exp i(-\omega_{23} - \omega_{12} + \omega_{13})t}_{\text{Terme séculaire}} \\
\mathbf{E}_0^{(-)} \cdot \exp(-it\omega_{12}) \beta_{\mu}(t) &\propto \exp i(+\omega_{23} - \omega_{12} + \omega_{13})t = \underbrace{\exp(2i\omega_{23}t)}_{\text{Terme oscillant}} \\
\sum_{\lambda} \mathbf{E}_{\lambda}^{(-)}(t) \cdot \exp(-it\omega_{12}) \cdot \beta_{\mu}(t) &\propto \underbrace{\exp i(-\omega_{\lambda} - \omega_{12} + \omega_{13})t}_{\text{Terme oscillant}} \approx \exp -it\omega_{\lambda} \\
\sum_{\lambda} \mathbf{E}_{\lambda}^{(+)}(t) \cdot \exp(-it\omega_{12}) \cdot \beta_{\mu}(t) &\propto \underbrace{\exp i(+\omega_{\lambda} - \omega_{12} + \omega_{13})t}_{\text{Terme oscillant}} \approx \exp +it\omega_{\lambda}
\end{aligned} \tag{6.48}$$

Nous avons l'approximation :

$$\frac{1}{i\hbar} \beta_{\mu}(t) \boldsymbol{\theta}_{23} \cdot \mathbf{E}_{tot} \cong \frac{1}{i\hbar} \beta_{\mu}(t) \boldsymbol{\theta}_{23} \cdot \mathbf{E}_0^{(+)} \tag{6.49}$$

Raisonnons sur le terme $\frac{1}{i\hbar}\gamma_{\mu}^*\boldsymbol{\theta}_{31}\cdot\mathbf{E}_{tot}$.

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}_0^{(+)}\cdot\exp(-it\omega_{12})\gamma_{\mu}^*(t) &\propto \underbrace{\exp i(-\omega_{23}-\omega_{12}-\omega_{23})t}_{\text{Terme oscillant}} = \exp\{-it(\omega_{12}+2\omega_{23})\} \\
\mathbf{E}_0^{(-)}\cdot\exp(-it\omega_{12})\gamma_{\mu}^*(t) &\propto \exp i(+\omega_{23}-\omega_{12}-\omega_{23})t = \underbrace{\exp(-i\omega_{12}t)}_{\text{Terme oscillant}} \\
\sum_{\lambda} \mathbf{E}_{\lambda}^{(-)}(t)\cdot\exp(-it\omega_{12})\cdot\gamma_{\mu}^*(t) &\propto \underbrace{\exp i(-\omega_{\lambda}-\omega_{12}-\omega_{23})t}_{\text{Terme oscillant}} \approx \exp\{-2it\omega_{\lambda}\} \\
\sum_{\lambda} \mathbf{E}_{\lambda}^{(+)}(t)\cdot\exp(-it\omega_{12})\cdot\gamma_{\mu}^*(t) &\propto \underbrace{\exp i(+\omega_{\lambda}-\omega_{12}-\omega_{23})t}_{\text{Terme séculaire}} \approx \exp\left(-\frac{1}{2}it\omega_{23}\right) \quad (6.50)
\end{aligned}$$

Nous avons donc l'approximation :

$$-\frac{1}{i\hbar}\gamma_{\mu}^*\boldsymbol{\theta}_{31}\cdot\mathbf{E}_{tot} \cong -\frac{1}{i\hbar}\gamma_{\mu}^*\boldsymbol{\theta}_{31}\cdot\left(\sum_{\lambda} \mathbf{E}_{\lambda}^{(+)}(t)\mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}_{\mu})\right) \quad (6.51)$$

Nous ne retenons aussi qu'un seul mode de l'effet laser dans la cavité. Nous réécrivons alors le résultat précédent :

$$-\frac{1}{i\hbar}\gamma_{\mu}^*\boldsymbol{\theta}_{31}\cdot\mathbf{E}_{tot} \cong -\frac{1}{i\hbar}\gamma_{\mu}^*\boldsymbol{\theta}_{31}\cdot\left(\mathbf{E}_{\lambda}^{(+)}(t)\mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}_{\mu})\right) \quad (6.52)$$

L'équation sur la cohérence $\alpha_{\mu}(t)$ se reformule de la façon suivante :

$$\boxed{\dot{\alpha}_{\mu}(t) = (i\omega_{12} - \Gamma_{12})\alpha_{\mu}(t) + \frac{1}{i\hbar}\left\{d_{1\mu}\boldsymbol{\theta}_{21}\cdot\mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}_{\mu})\mathbf{E}_{\lambda}^{(+)} + \beta_{\mu}\boldsymbol{\theta}_{23}\cdot\mathbf{E}_0^{(+)} - \gamma_{\mu}^*\boldsymbol{\theta}_{31}\cdot\mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}_{\mu})\mathbf{E}_{\lambda}^{(+)}\right\}} \quad (6.53)$$

De la même manière, nous obtenons l'équation sur la cohérence $\beta_{\mu}(t)$:

$$\boxed{\dot{\beta}_{\mu}(t) = (i\omega_{13} - \Gamma_{13})\beta_{\mu}(t) + \frac{1}{i\hbar}\left\{d_{2\mu}\boldsymbol{\theta}_{31}\cdot\mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}_{\mu})\mathbf{E}_{\lambda}^{(+)} + \alpha_{\mu}\boldsymbol{\theta}_{32}\cdot\mathbf{E}_0^{(-)} - \gamma_{\mu}\boldsymbol{\theta}_{21}\cdot\mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}_{\mu})\mathbf{E}_{\lambda}^{(+)}\right\}} \quad (6.54)$$

Nous multiplions l'équation de cohérence de $\gamma_{\mu}(t)$ par la fonction $\exp(-it\omega_{23})$. Nous

devons traiter le terme $\frac{1}{i\hbar}(d_{2\mu} - d_{1\mu})\boldsymbol{\theta}_{32} \cdot \mathbf{E}_{tot}$.

$$\begin{aligned}
\frac{1}{i\hbar}(d_{2\mu} - d_{1\mu}) \exp(-it\omega_{23})\boldsymbol{\theta}_{32} \cdot \mathbf{E}_0^{(-)} &\propto \underbrace{\exp it(-\omega_{23} + \omega_{23})}_{\text{Terme séculaire}} \\
\frac{1}{i\hbar}(d_{2\mu} - d_{1\mu}) \exp(-it\omega_{23})\boldsymbol{\theta}_{32} \cdot \mathbf{E}_0^{(+)} &\propto \underbrace{\exp it(-\omega_{23} - \omega_{23})}_{\text{Terme oscillant}} \\
\frac{1}{i\hbar}(d_{2\mu} - d_{1\mu}) \exp(-it\omega_{23})\boldsymbol{\theta}_{32} \cdot \sum_{\lambda} E_{\lambda}^{(+)}(t) &\propto \underbrace{\exp it(-\omega_{23} + \omega_{\lambda})}_{\text{Terme oscillant}} \\
\frac{1}{i\hbar}(d_{2\mu} - d_{1\mu}) \exp(-it\omega_{23})\boldsymbol{\theta}_{32} \cdot \sum_{\lambda} E_{\lambda}^{(-)}(t) &\propto \underbrace{\exp it(-\omega_{23} - \omega_{\lambda})}_{\text{Terme oscillant}} \quad (6.55)
\end{aligned}$$

Nous retenons l'approximation :

$$\frac{1}{i\hbar}(d_{2\mu} - d_{1\mu})\boldsymbol{\theta}_{32} \cdot \mathbf{E}_{tot} \cong \frac{1}{i\hbar}(d_{2\mu} - d_{1\mu})\boldsymbol{\theta}_{32} \cdot \mathbf{E}_0^{(-)} \quad (6.56)$$

Nous traitons le terme $\frac{1}{i\hbar}\alpha_{\mu}^*\boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \mathbf{E}_{tot}$.

$$\begin{aligned}
\frac{1}{i\hbar}\alpha_{\mu}^* \exp(-it\omega_{23})\boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \mathbf{E}_0^{(-)} &\propto \underbrace{\exp it(-\omega_{12} - \omega_{23} + \omega_{23})}_{\text{Terme oscillant}} \\
\frac{1}{i\hbar}\alpha_{\mu}^* \exp(-it\omega_{23})\boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \mathbf{E}_0^{(+)} &\propto \underbrace{\exp it(-\omega_{12} - \omega_{23} - \omega_{23})}_{\text{Terme oscillant}} \\
\frac{1}{i\hbar}\alpha_{\mu}^* \exp(-it\omega_{23})\boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \sum_{\lambda} E_{\lambda}^{(+)}(t) &\propto \underbrace{\exp it(-\omega_{12} - \omega_{23} + \omega_{\lambda})}_{\text{Terme séculaire}} \\
\frac{1}{i\hbar}\alpha_{\mu}^* \exp(-it\omega_{23})\boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \sum_{\lambda} E_{\lambda}^{(-)}(t) &\propto \underbrace{\exp it(-\omega_{12} - \omega_{23} - \omega_{\lambda})}_{\text{Terme oscillant}} \quad (6.57)
\end{aligned}$$

Nous pouvons formuler :

$$\frac{1}{i\hbar}\alpha_{\mu}^*\boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \mathbf{E}_{tot} \cong \frac{1}{i\hbar}\alpha_{\mu}^*\boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \sum_{\lambda} E_{\lambda}^{(+)}(t)\mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}_{\mu}) \quad (6.58)$$

En ne retenant qu'un seul mode de l'effet laser dans la cavité :

$$\frac{1}{i\hbar}\alpha_{\mu}^*\boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \mathbf{E}_{tot} \cong \frac{1}{i\hbar}\alpha_{\mu}^*\boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \mathbf{u}_{\lambda}(\mathbf{x}_{\mu})E_{\lambda}^{(+)} \quad (6.59)$$

Nous traitons le terme $\frac{1}{i\hbar}\beta_\mu\boldsymbol{\theta}_{12}\cdot\mathbf{E}_{tot}$.

$$\begin{aligned}
\frac{1}{i\hbar}\beta_\mu\exp(-it\omega_{23})\boldsymbol{\theta}_{12}\cdot\mathbf{E}_0^{(-)} &\propto \underbrace{\exp it(+\omega_{13}-\omega_{23}+\omega_{23})}_{\text{Terme oscillant}} \\
\frac{1}{i\hbar}\beta_\mu\exp(-it\omega_{23})\boldsymbol{\theta}_{12}\cdot\mathbf{E}_0^{(+)} &\propto \underbrace{\exp it(+\omega_{13}-\omega_{23}-\omega_{23})}_{\text{Terme oscillant}} \\
\frac{1}{i\hbar}\beta_\mu\exp(-it\omega_{23})\boldsymbol{\theta}_{12}\cdot\sum_\lambda E_\lambda^{(+)}(t) &\propto \underbrace{\exp it(+\omega_{13}-\omega_{23}+\omega_\lambda)}_{\text{Terme oscillant}} \\
\frac{1}{i\hbar}\beta_\mu\exp(-it\omega_{23})\boldsymbol{\theta}_{12}\cdot\sum_\lambda E_\lambda^{(-)}(t) &\propto \underbrace{\exp it(+\omega_{13}-\omega_{23}-\omega_\lambda)}_{\text{Terme séculaire}} \tag{6.60}
\end{aligned}$$

Nous pouvons formuler :

$$\frac{1}{i\hbar}\beta_\mu\boldsymbol{\theta}_{12}\cdot\mathbf{E}_{tot} \cong \frac{1}{i\hbar}\beta_\mu\boldsymbol{\theta}_{12}\cdot\sum_\lambda E_\lambda^{(-)}(t)\mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \tag{6.61}$$

En ne retenant qu'un seul mode de l'effet laser dans la cavité :

$$\frac{1}{i\hbar}\beta_\mu\boldsymbol{\theta}_{12}\cdot\mathbf{E}_{tot} \cong \frac{1}{i\hbar}\beta_\mu\boldsymbol{\theta}_{12}\cdot\mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu)E_\lambda^{(-)} \tag{6.62}$$

L'équation sur la cohérence $\gamma_\mu(t)$ s'exprime finalement par :

$$\dot{\gamma}_\mu(t) = (i\omega_{23} - \Gamma_{23})\gamma_\mu + \frac{1}{i\hbar} \left\{ (d_{2\mu} - d_{1\mu})\boldsymbol{\theta}_{32}\cdot\mathbf{E}_0^{(-)} + \alpha_\mu^*\boldsymbol{\theta}_{31}\cdot\mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu)E_\lambda^{(+)} - \beta_\mu\boldsymbol{\theta}_{12}\cdot\mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu)E_\lambda^{(-)} \right\} \tag{6.63}$$

Les dérivées par rapport au temps des inversions de populations $d_{1\mu}$ et $d_{2\mu}$ dépendent de ces dernières variables divisées par le temps de relaxation T_r . De manière évidente, l'approximation séculaire et la sélection d'un seul mode de l'effet laser permettent d'écrire :

$$\left\{ \begin{aligned}
\dot{d}_{1\mu}(t) &= \frac{1}{i\hbar} \left\{ 2(\alpha_\mu\boldsymbol{\theta}_{12}\cdot\mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu)E_\lambda^{(-)} - \alpha_\mu^*\boldsymbol{\theta}_{21}\cdot\mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu)E_\lambda^{(+)}) + \beta_\mu\boldsymbol{\theta}_{13}\cdot\mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu)E_\lambda^{(-)} - \beta_\mu^*\boldsymbol{\theta}_{31}\cdot\mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu)E_\lambda^{(+)} \right\} \\
&\quad + \frac{1}{i\hbar} \left\{ \gamma_\mu^*\boldsymbol{\theta}_{32}\cdot\mathbf{E}_0^{(-)} - \gamma_\mu\boldsymbol{\theta}_{23}\cdot\mathbf{E}_0^{(+)} \right\} + \frac{d_{01}-d_{1\mu}}{T_r} \\
\dot{d}_{2\mu}(t) &= \frac{1}{i\hbar} \left\{ 2(\beta_\mu\boldsymbol{\theta}_{13}\cdot\mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu)E_\lambda^{(-)} - \beta_\mu^*\boldsymbol{\theta}_{31}\cdot\mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu)E_\lambda^{(+)}) + \alpha_\mu\boldsymbol{\theta}_{12}\cdot\mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu)E_\lambda^{(-)} - \alpha_\mu^*\boldsymbol{\theta}_{21}\cdot\mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu)E_\lambda^{(+)} \right\} \\
&\quad + \frac{1}{i\hbar} \left\{ \gamma_\mu\boldsymbol{\theta}_{23}\cdot\mathbf{E}_0^{(+)} - \gamma_\mu^*\boldsymbol{\theta}_{32}\cdot\mathbf{E}_0^{(-)} \right\} + \frac{d_{02}-d_{2\mu}}{T_r}
\end{aligned} \right. \tag{6.64}$$

6.1.7 Approximation de l'amplitude variant lentement

Dans le cadre de cette approximation, nous dérivons à nouveau l'équation vérifiée par $E_\lambda^{(+)}$ compte-tenu de notre convention sur les parties de fréquences positive et négative consistantes avec la section (6.1.6.). L'équation (6.40) est ici réécrite et nous lui attribuons un nouveau numéro :

$$\omega_\lambda^2 E_\lambda + \ddot{E}_\lambda + \frac{\sigma_\lambda}{\epsilon_0} \dot{E}_\lambda = -\frac{1}{\epsilon_0} \ddot{P}_\lambda \quad (6.65)$$

Nous rappelons brièvement les étapes de ce calcul.

$$E_\lambda^{(+)} = A_\lambda(t) e^{+i\omega_\lambda t} \quad (6.66)$$

Nous supposons :

$$\left| \frac{dA_\lambda}{dt} \right| \ll |\omega_\lambda A_\lambda| \quad (6.67)$$

Nous dérivons par rapport au temps (6.66) :

$$\frac{d}{dt} E_\lambda^{(+)} = \left((i\omega_\lambda) A_\lambda + \frac{dA_\lambda}{dt} \right) \exp [i\omega_\lambda t] \quad (6.68)$$

En exploitant (6.67) :

$$\frac{d}{dt} E_\lambda^{(+)} \approx i\omega_\lambda E_\lambda^{(+)} \quad (6.69)$$

$$\omega_\lambda^2 E_\lambda^{(+)} + \ddot{E}_\lambda^{(+)} = [\omega_\lambda^2 A_\lambda - \omega_\lambda^2 A_\lambda + 2i\omega_\lambda \dot{A}_\lambda + \ddot{A}_\lambda] e^{i\omega_\lambda t} \quad (6.70)$$

En analogie avec (6.67), nous supposons également :

$$|\ddot{A}_\lambda| \ll |\omega_\lambda \dot{A}_\lambda| \quad (6.71)$$

$$\omega_\lambda^2 E_\lambda^{(+)} + \ddot{E}_\lambda^{(+)} \approx 2i\omega_\lambda \dot{A}_\lambda e^{i\omega_\lambda t} \quad (6.72)$$

$$\omega_\lambda^2 E_\lambda^{(+)} + \ddot{E}_\lambda^{(+)} = (2i\omega_\lambda) \left[\dot{E}_\lambda^{(+)} - (i\omega_\lambda) E_\lambda^{(+)} \right] \quad (6.73)$$

Nous partons de (6.65) :

$$\begin{aligned} \omega_\lambda^2 E_\lambda^{(+)} + \ddot{E}_\lambda^{(+)} + \frac{\sigma_\lambda}{\epsilon_0} \dot{E}_\lambda^{(+)} &= -\frac{1}{\epsilon_0} \ddot{P}_\lambda^{(+)} \\ (2i\omega_\lambda) \left[\dot{E}_\lambda^{(+)} - (i\omega_\lambda) E_\lambda^{(+)} \right] + \frac{\sigma_\lambda}{\epsilon_0} \dot{E}_\lambda^{(+)} &= -\frac{1}{\epsilon_0} \ddot{P}_\lambda^{(+)} \\ 2i\omega_\lambda \dot{E}_\lambda^{(+)} + 2\omega_\lambda^2 E_\lambda^{(+)} + \frac{\sigma_\lambda}{\epsilon_0} i\omega_\lambda E_\lambda^{(+)} &= -\frac{1}{\epsilon_0} \ddot{P}_\lambda^{(+)} \\ \dot{E}_\lambda^{(+)} + \left(-i\omega_\lambda + \frac{\sigma_\lambda}{2\epsilon_0} \right) E_\lambda^{(+)} &= \frac{i}{2\epsilon_0 \omega_\lambda} \ddot{P}_\lambda^{(+)} \end{aligned} \quad (6.74)$$

Nous introduisons la forme abrégée :

$$\kappa_\lambda = \frac{\sigma_\lambda}{2\epsilon_0} \quad (6.75)$$

Nous rappelons l'expression de $P_\lambda^{(+)}(t)$:

$$P_\lambda^{(+)}(t) = - \sum_{\mu} \{ \alpha_\mu(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \boldsymbol{\theta}_{12} + \beta_\mu(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \boldsymbol{\theta}_{13} + \gamma_\mu(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \boldsymbol{\theta}_{23} \} \quad (6.76)$$

Nous dérivons deux fois P_λ par rapport au temps. Nous obtenons, en valeur approchée, une somme de cohérences multipliées par le carré de la pulsation associée à chacune de ces cohérences. Nous pouvons supposer que les pulsations des deux cohérences $\alpha_\mu(t)$ et $\beta_\mu(t)$ approchent la valeur Ω . Cela sous-entend que la séparation en énergies entre les deux sous-niveaux bas est négligeable devant les pulsations de transitions atomiques $\omega_{1,2-3}$. Nous désignons par ω_λ la pulsation de la cavité non chargée par le matériau actif (ici le Ti :saphir). Nous avons l'ensemble des approximations suivantes $\Omega \approx \omega_{1,2-3} \approx \omega_\lambda$. La dernière équation de (6.74) est réécrite :

$$\dot{E}_\lambda^{(+)} = (i\omega_\lambda - \kappa_\lambda) E_\lambda^{(+)} + \frac{i}{2\epsilon_0\omega_\lambda} \sum_{\mu} \{ \Omega^2 \alpha_\mu(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \boldsymbol{\theta}_{12} + \Omega^2 \beta_\mu(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \boldsymbol{\theta}_{12} + \omega_{23}^2 \gamma_\mu(t) \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \boldsymbol{\theta}_{23} \} \quad (6.77)$$

Nous réécrivons le système d'équations du laser à trois niveaux électroniques d'énergie avec des grandeurs sans dimensions.

Nous savons que $[\mathbf{u}] = L^{-\frac{3}{2}}$. Nous introduisons les grandeurs sans dimension représentant le mode du champ électrique de l'effet laser dans la cavité :

$$E_\lambda^{(+)} = -i \sqrt{\frac{\hbar\omega_\lambda}{2\epsilon_0}} b_\lambda \quad E_\lambda^{(-)} = +i \sqrt{\frac{\hbar\omega_\lambda}{2\epsilon_0}} b_\lambda^* \quad (6.78)$$

Nous introduisons quatre constantes de couplage :

$$g_{\mu\lambda(1,2)} = i \sqrt{\frac{\omega_\lambda}{2\hbar\epsilon_0}} \boldsymbol{\theta}_{21} \cdot \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \quad g_{\mu\lambda(1,3)} = i \sqrt{\frac{\omega_\lambda}{2\hbar\epsilon_0}} \boldsymbol{\theta}_{31} \cdot \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \quad (6.79)$$

$$g_{\mu(2,3)} = \frac{1}{\hbar} e^{-i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{x}_\mu + \phi)} \mathbf{e}_z \cdot \boldsymbol{\theta}_{23} \quad g_{\mu 1} = i \frac{\omega_{23}^2}{\omega_\lambda} \frac{1}{\sqrt{2\hbar\omega_\lambda\epsilon_0}} \mathbf{u}_\lambda(\mathbf{x}_\mu) \boldsymbol{\theta}_{32} \quad (6.80)$$

Nous adoptons les abréviations, avec \mathcal{E}_0 l'amplitude du champ électrique habillant les

deux sous-niveaux proches 2 et 3 :

$$E_0^+ = \frac{\mathcal{E}_0}{2} e^{-i\omega_{23}t} \quad E_0^- = \frac{\mathcal{E}_0}{2} e^{+i\omega_{23}t} \quad E_0 = \frac{\mathcal{E}_0}{2} \quad (6.81)$$

Nous obtenons le système d'équations pour un seul mode de l'effet laser. C'est le système des équations de notre laser à trois niveaux d'énergie :

$$\dot{\alpha}_\mu(t) = (i\omega_{12} - \Gamma_{12})\alpha_\mu + id_{1\mu} g_{\mu\lambda(1,2)} b_\lambda - i\beta_\mu g_{\mu(2,3)} E_0^+ - i\gamma_\mu^* g_{\mu\lambda(1,3)} b_\lambda \quad (6.82)$$

$$\dot{\beta}_\mu(t) = (i\omega_{13} - \Gamma_{13})\beta_\mu + id_{2\mu} g_{\mu\lambda(1,3)} b_\lambda - i\alpha_\mu g_{\mu(2,3)}^* E_0^- - i\gamma_\mu g_{\mu\lambda(1,2)} b_\lambda \quad (6.83)$$

$$\dot{\gamma}_\mu(t) = (i\omega_{23} - \Gamma_{23})\gamma_\mu - i(d_{2\mu} - d_{1\mu}) g_{\mu(2,3)}^* E_0^- + i\alpha_\mu^* g_{\mu\lambda(1,3)} b_\lambda - i\beta_\mu g_{\mu\lambda(1,2)}^* b_\lambda^* \quad (6.84)$$

$$\begin{aligned} \dot{d}_{1\mu}(t) = & 2(i\alpha_\mu g_{\mu\lambda(1,2)}^* b_\lambda^* - i\alpha_\mu^* g_{\mu\lambda(1,2)} b_\lambda) + i\beta_\mu g_{\mu\lambda(1,3)}^* b_\lambda^* - i\beta_\mu^* g_{\mu\lambda(1,3)} b_\lambda \\ & - i\gamma_\mu^* g_{\mu(2,3)}^* E_0^- + i\gamma_\mu g_{\mu(2,3)} E_0^+ + \frac{d_{01} - d_{1\mu}}{T_r} \end{aligned} \quad (6.85)$$

$$\begin{aligned} \dot{d}_{2\mu}(t) = & 2(i\beta_\mu g_{\mu\lambda(1,3)}^* b_\lambda^* - i\beta_\mu^* g_{\mu\lambda(1,3)} b_\lambda) + i\alpha_\mu g_{\mu\lambda(1,2)}^* b_\lambda^* - i\alpha_\mu^* g_{\mu\lambda(1,2)} b_\lambda \\ & - i\gamma_\mu g_{\mu(2,3)} E_0^+ + i\gamma_\mu^* g_{\mu(2,3)}^* E_0^- + \frac{d_{02} - d_{2\mu}}{T_r} \end{aligned} \quad (6.86)$$

$$\dot{b}_\lambda = (i\omega_\lambda - \kappa_\lambda) b_\lambda - i \sum_\mu (\alpha_\mu g_{\mu\lambda(1,2)}^* + \beta_\mu g_{\mu\lambda(1,3)}^* + \gamma_\mu g_{\mu 1}^*) \quad (6.87)$$

Nous allons consacrer le reste du chapitre à résoudre le précédent système. Cette résolution sera limitée à l'établissement des conditions de seuil d'effet laser généralisées.

6.1.8 Partition de l'axe du temps en deux périodes

Nous adoptons une méthode de résolution basée sur une partition de l'axe du temps en deux périodes. Nous évaluons alors les conditions de seuil généralisées lorsque nous traversons ces seuils "par en dessous". Notre démarche pourra être fondée sur le calcul d'une équation de van der Pol, mais cela n'est pas exclusif.

Nous nous placerons ainsi juste à la traversée, par en-dessous, du seuil de l'effet laser. Les cohérences α_μ , β_μ , juste au-dessus du seuil, seront exprimées en fonction de b_λ (la variable adimensionnelle associée au mode temporel du champ électrique dans la cavité pour sa partie en fréquence positive). Cette variable de mode du champ électrique dans la cavité laser, juste en dessous du seuil, part de zéro et garde cette valeur avec un temps

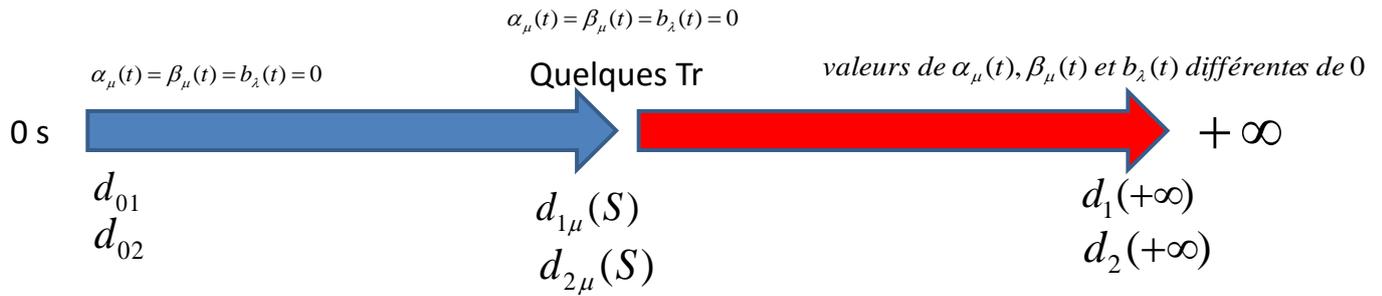


FIGURE 6.4 – Partition de l'axe du temps en deux périodes.

idéal infini. Nous voulons dire que ce temps est bien plus grand que le temps T_r vu par les inversions de populations $d_{1\mu}$ et $d_{2\mu}$.

6.1.8.1 Première période

Dans une première période de 0 (notre origine des temps) jusqu'à quelques T_r , ces inversions de populations évoluent à partir de valeurs non-saturées sous l'action du champ électrique du laser d'injection de cohérence. Les cohérences $\alpha_\mu(t)$ et $\beta_\mu(t)$ sont prises nulles. Par contre la cohérence $\gamma_\mu(t)$ est non nulle. Nous retrouvons le problème de l'interaction d'un champ électrique classique avec un système à deux niveaux, à la prise en compte des phénomènes de pompe et de relaxations près. Nous obtenons alors au bout de quelques T_r des valeurs $d_{1\mu}(S)$ et $d_{2\mu}(S)$ constantes. De même, la cohérence γ_μ prendra une première valeur stationnaire multipliée par $\exp(i\omega_{23}t)$ à la fin de cette période.

Nous résumons les notations. Première période du temps de 0 jusqu'à quelques T_r :

$$\alpha_\mu = \beta_\mu = b_\lambda = 0$$

$$d_{1\mu} \rightarrow d_{1\mu}(S) \quad d_{2\mu} \rightarrow d_{2\mu}(S)$$

6.1.8.2 Seconde période

La seconde période de temps se déploie de quelques T_r jusqu'à $+\infty$ (en théorie). Elle voit les évolutions de α_μ , β_μ et b_λ . Au final, nous obtenons une équation ne comprenant que l'inconnue b_λ , du type de van der Pol. Elle devrait fournir une nouvelle condition de seuil pour ce laser à trois niveaux électroniques d'énergie.

La résolution des équations du laser que nous proposons autoriserait seulement la détermination de la condition de seuil de l'effet laser. Les cohérences α_μ et β_μ seront exprimées linéairement à partir de la variable de champ b_λ et l'évolution au seuil de ce champ sera supposée très lente (aussi avec un temps caractéristique très grand par rap-

port à T_r). Nous allons proposer un schéma de principe d'un dispositif expérimental implémentant le concept d'effet laser sans inversion de populations tel qu'évoqué dans la section précédente (6.1). L'intérêt sera de poser de premiers dimensionnements spatial et en énergie/puissance.

6.2 Proposition de dispositif expérimental

6.2.1 Descriptif de la figure (6.5)

La cavité du laser à état solide est confocale symétrique d'axe [Oz]. Les deux miroirs M_1 et M_2 concaves ont le même rayon $R_1 = R_2 = 400$ mm. M_1 est ici un miroir de fond de cavité et est dichroïque : transparent pour le faisceau de pompe dans le vert et totalement réfléchissant pour le rouge. L'émission laser dans le rouge se fait à la traversée du miroir M_2 . La distance entre ces deux miroirs s'évalue à $l = 400$ mm. La relation $2l = R_1 + R_2$ est bien vérifiée. L'échantillon de Ti :saphir est un cylindre d'axe [oz] de hauteur 1.5 mm et de diamètre 0.56 mm placé au milieu de la cavité. Nous avons choisi de telles dimensions pour le cristal de Ti :saphir afin que les dimensions du dispositifs n'excèdent pas quelques mètres.

Sur l'axe [Oz] du côté des valeurs négatives, nous plaçons derrière le miroir dichroïque M_1 un laser de pompe opérant en continu et émettant à 527 nm. Son faisceau a une section droite S de 1mm^2 .

Sur l'axe [Ox] du côté des valeurs positives, nous plaçons un laser émettant dans l'infrarouge à la longueur d'onde de $17.04\ \mu\text{m}$. Il faudrait vérifier l'existence d'un tel laser. Une recherche rapide fournit les candidats CF_4 , CF_3I et NH_3 pompés par une émission unique correctement accordée d'un laser CO_2 TEA. Ce laser d'habillage des deux sous-niveaux proches 2 et 3 est placé de telle manière que son faisceau irradie toute la longueur de l'échantillon (ici 1.5 mm).

Nous allons préciser les diagrammes énergétiques du Ti :saphir pour les deux symétries octaédrique et trigonale.

6.2.2 Diagrammes énergétiques

A la symétrie octaédrique du Ti :saphir est associé un diagramme à quatre niveaux lorsque nous incluons les processus de pompage et de relaxations. Le pompage s'effectue à la longueur d'onde dans le vert et les émissions spontanée et stimulée sont les plus probables dans le rouge à 800 nm. Les deux niveaux hauts correspondent au niveau élec-

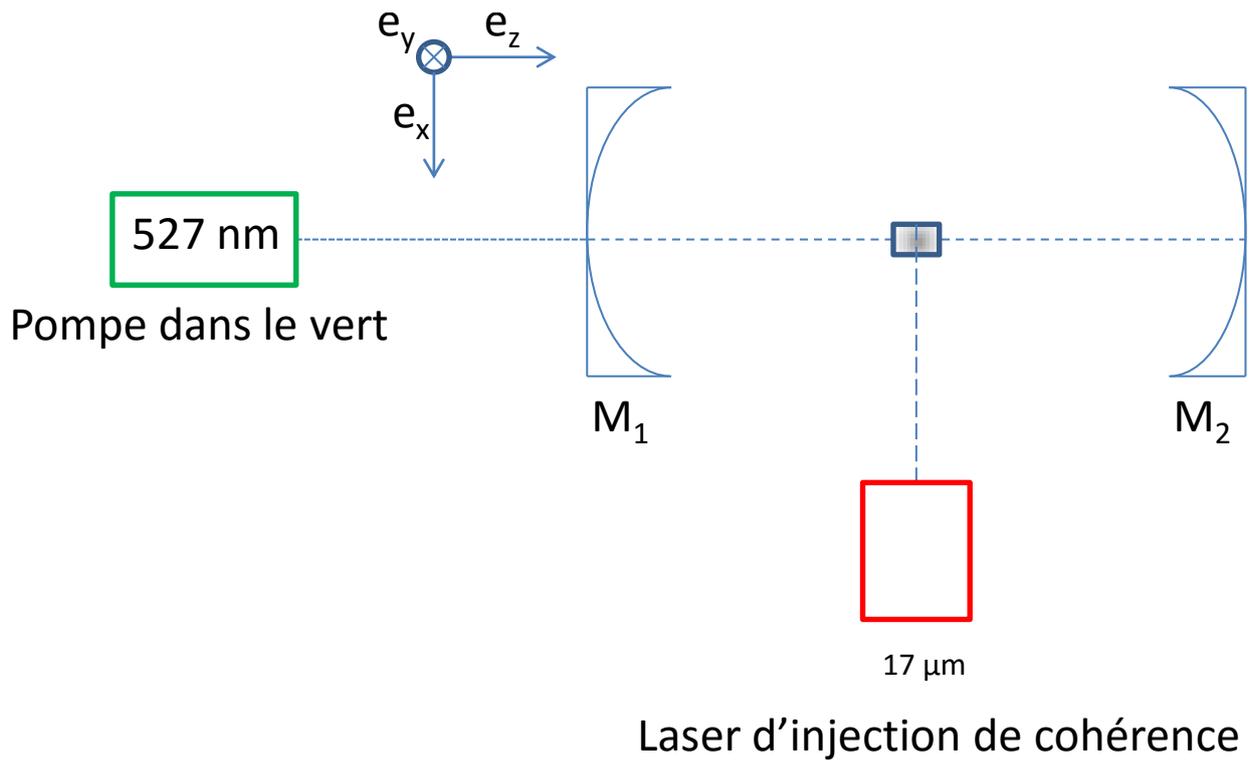


FIGURE 6.5 – Dispositif expérimental. Représentation schématique.

tronique dénommé E_g , quant aux deux niveaux bas, nous pouvons les associer au niveau électronique T_{2g} . Les degrés de dégénérescence respectifs de E_g et T_{2g} sont 2 et 3. Nous pouvons traiter ce cas comme un système à deux niveaux électroniques lors de l'établissement des grandeurs relatives à la cavité à état solide. La figure (6.6) précise les notations.

A la symétrie trigonale est associé un diagramme à cinq niveaux. Nous avons trois niveaux électroniques impliqués dans les émissions spontanée et stimulée et deux autres niveaux exploités pour les processus de pompage et de relaxations (un niveau fondamental et un autre le plus haut). La figure (6.2) précise les notations. Le sous-niveau électronique le plus bas est pris comme origine des énergies. Il est non-dégénéré. Il est suivi par un autre sous-niveau deux fois dégénéré, disposant de l'énergie 587 cm^{-1} . Le troisième niveau électronique est deux fois dégénéré et dispose de l'énergie $19\,802 \text{ cm}^{-1}$. Cela est indiqué dans le tableau (6.1).

Niveau octaédrique	Niveau trigonal	Energies en cm^{-1}	Dégénérescence
T_{2g}	A	0	1
T_{2g}	E	587	2
E_g	E	19802	2

TABLE 6.1 – Diagramme d'énergies électroniques

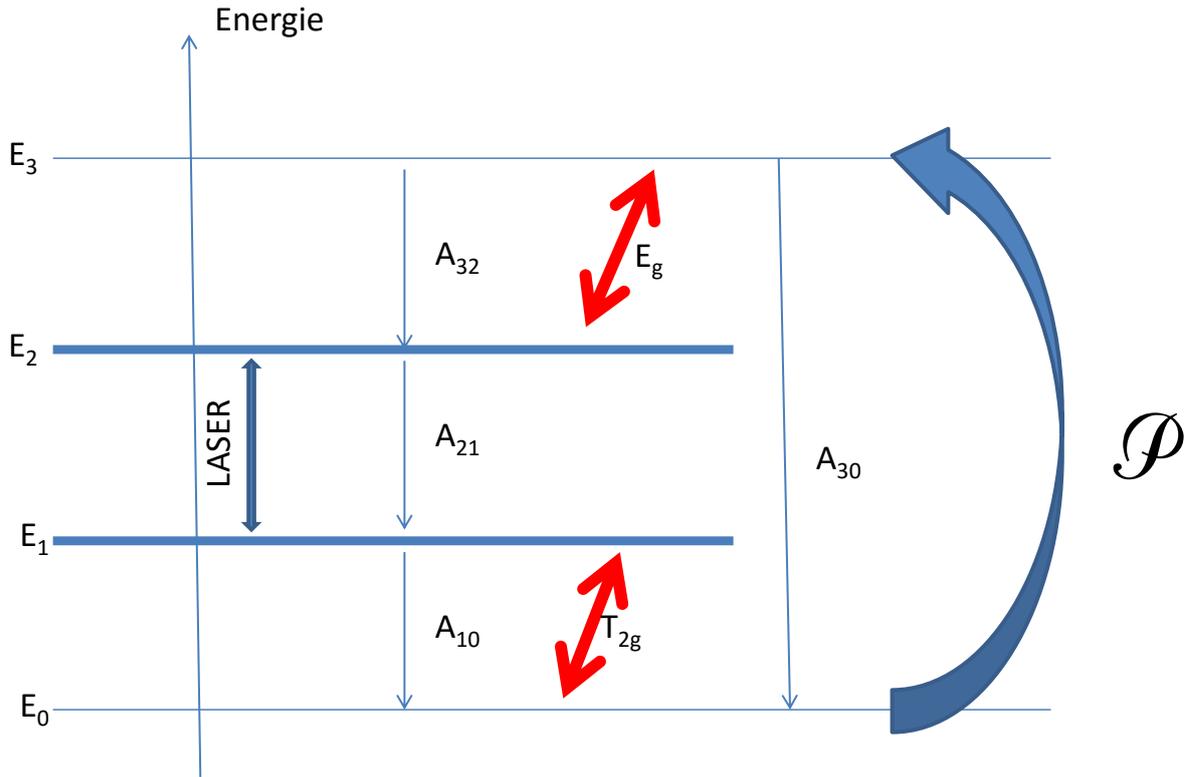


FIGURE 6.6 – Diagramme à quatre niveaux (symétrie octaédrique). Notations selon Cagnac et al. Les niveaux 3 et 2 correspondent à E_g , 1 et 0 à T_{2g}

6.2.3 Fonctionnement de la cavité en régime continu

Les miroirs M_1 et M_2 possèdent les coefficients respectifs de réflectivité $R_{f1} = 1$ et $R_{f2} = 0.98$. La constante de temps de la cavité est τ_c donnée par la formule :

$$\tau_c = \frac{2l}{c} \cdot \frac{1}{(1 - R_{f1}) + (1 - R_{f2})} = 133 \text{ ns} \quad (6.88)$$

La différence pondérée des populations D_{seuil} s'évalue :

$$D_{seuil} = \frac{1}{\eta \sigma_{21}(\nu) c \tau_c} \quad (6.89)$$

Où η désigne le coefficient de remplissage de la cavité à état solide ($\eta = \frac{1.5 \text{ mm}}{400 \text{ mm}} = 3.75 \times 10^{-3}$). $\sigma_{12}(800 \text{ nm}) = 3 \times 10^{-23} \text{ m}^2$ note le maximum de section efficace d'émission stimulée à la longueur d'onde de 800 nm. La valeur de seuil se détermine comme suit : $D_{seuil} = 2.23 \times 10^{23} \text{ m}^{-3} = 2.23 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$.

Nous admettons une concentration en dopant titane de 0.1 % en masse de Ti_2O_3 dans le saphir. La concentration en ions titane est donc égale à $n = 3.3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. En désignant par n_1 et n_2 les concentrations des électrons $3d^1$ des ions titane sur les niveaux respectifs

1 et 2 (comme noté sur la figure (6.6)), nous avons les évaluations :

$$D = n_2 - \frac{2}{3}n_1 \quad n_2 \left(1 + \frac{2}{3}\right) = D + n_2 \frac{2}{3} \quad n_1 \left(1 + \frac{2}{3}\right) = n - D \quad (6.90)$$

L'application numérique fournit les valeurs de seuil des populations n_1 et n_2 :

$$\begin{aligned} n_1 &= 1.333 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \\ n_2 &= 1.966 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \end{aligned} \quad (6.91)$$

L'équation générale du fonctionnement du laser pour l'énergie dans la cavité (notée W_{cav}) s'écrit :

$$\frac{dW_{cav}}{dt} = \left[\frac{D(t)}{D_{seuil}} - 1 \right] \frac{1}{\tau_c} W_{cav}(t) \quad (6.92)$$

Nous abordons maintenant le fonctionnement en régime continu et nous déterminons la puissance maximale continue disponible. Nous proposons les évaluations suivantes des différentes fréquences de relaxation :

$$A_{32} \approx A_{10} \approx (5 \text{ ps})^{-1} \quad A_{21} = (3.2 \text{ } \mu\text{s})^{-1} \quad A_{30} \ll A_{32} \quad (6.93)$$

Comme précisé dans [50], la différence pondérée des populations asymptotique due à la cinétique de pompage (cavité sans lumière) est notée D_P et se formule :

$$D_P = n \cdot \frac{\epsilon}{\beta + \epsilon} \quad (6.94)$$

ϵ et β s'expriment comme suit :

$$\beta = 1 + \frac{B_{12}}{B_{21}} + \frac{A_{10}}{\mathcal{P}} \left(1 + \frac{A_{30}}{A_{32}}\right) + \frac{A_{10}}{A_{32}} \quad (6.95)$$

$$\epsilon = \frac{A_{10}}{A_{21}} - \frac{B_{12}}{B_{21}} \quad (6.96)$$

\mathcal{P} désigne la probabilité de pompage par unité de temps. Nous supposons que $\mathcal{P} \approx 5000 \text{ Hz}$ (cette valeur sera supérieure à celle du seul et permet de vérifier que $\frac{\mathcal{P}}{A_{21}}$ est très inférieur à l'unité). B_{12} et B_{21} notent les coefficients d'Einstein pour l'absorption et l'émission stimulées. Leur ratio est de l'ordre de grandeur de l'unité. Les ratios $\frac{\mathcal{P}}{A_{ij}}$ seront tous pris très inférieurs à l'unité. Ainsi, nous calculons $\frac{\mathcal{P}}{A_{21}} = 0.016$. Nous avons alors les deux

approximations :

$$\beta \approx \frac{A_{10}}{\mathcal{P}} \quad \epsilon \approx \frac{A_{10}}{A_{21}} \quad (6.97)$$

Nous calculons D_P :

$$D_P = n \cdot \frac{1}{1 + \frac{\beta}{\epsilon}} \quad \frac{\beta}{\epsilon} = \frac{A_{21}}{\mathcal{P}} \quad (6.98)$$

$$D_P = 5.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3} \quad (6.99)$$

La densité d'énergie de référence dans la cavité est définie par :

$$w_r = \frac{A_{21}}{B_{21}\varphi(\nu)} \left(1 + \frac{\epsilon}{\beta} \right) \quad (6.100)$$

Nous avons la relation entre le produit du coefficient d'Einstein B_{21} et la forme de raie normalisée $\varphi(\nu)$ à 800 nm : $B_{21}\varphi(\nu) = \frac{\sigma_{21}(\nu)\lambda}{h} = 36206 \text{ m} \cdot \text{s} \cdot \text{kg}^{-1}$. Nous estimons que $w_r = 8.769 \text{ J/m}^3$. En supposant $T = \frac{2}{100}$ pour la transmission du miroir M_2 et $S = 1 \text{ mm}^2$ pour la section du faisceau (soit 10^{-6} m^2), la puissance de sortie prendrait la valeur :

$$P_{\text{sortie}} = TSc \frac{w_r}{2} \left(\frac{D_P}{D_{\text{seuil}}} - 1 \right) = 35 \text{ W} \quad (6.101)$$

Cela serait une valeur maximale atteignable en régime continu pour notre laser Ti :saphir dont le diagramme en énergies serait donné avec quatre niveaux (symétrie octaédrique) sans intervention du pompage infrarouge entre les deux sous-niveaux proches et bas issus, par contre, de la symétrie trigonale. Nous évaluons la puissance issue du pompage comme suit : $n \cdot S \cdot 1.5 \text{ mm} \cdot \mathcal{P} \times (h\nu)(527 \text{ nm})$. Nous trouvons une puissance de pompage de l'ordre de 93.3 W. Cette valeur est consistante avec celle obtenue en sortie du laser.

6.3 En dessous du seuil de l'effet laser et début de solution

6.3.1 Estimations quantitatives des grandeurs de fonctionnement

Nous considérons un point de fonctionnement où nous n'avons pas d'émission cohérente d'un mode de l'effet laser dans la cavité. La première période de temps telle que définie en (6.1.8.1) est envisagée et nous postulons :

$$\alpha_\mu(t) = \beta_\mu(t) = b_\lambda(t) = 0 \quad (6.102)$$

Nous écrivons alors les équations de la matière :

$$\dot{\gamma}_\mu(t) = (i\omega_{23} - \Gamma_{23})\gamma_\mu - i(d_{2\mu} - d_{1\mu})g_{\mu(2,3)}^* E_0^- \quad (6.103)$$

$$\dot{d}_{1\mu}(t) = -i\gamma_\mu^* g_{\mu(2,3)}^* E_0^- + i\gamma_\mu g_{\mu(2,3)} E_0^+ + \frac{d_{01} - d_{1\mu}}{T_r} \quad (6.104)$$

$$\dot{d}_{2\mu}(t) = -i\gamma_\mu g_{\mu(2,3)} E_0^+ + i\gamma_\mu^* g_{\mu(2,3)}^* E_0^- + \frac{d_{02} - d_{2\mu}}{T_r} \quad (6.105)$$

Nous adoptons dès à présent les conventions d'écriture :

$$\omega_{23} = \omega_0 \quad \Gamma_{23} = \Gamma_0 \quad g_{\mu(2,3)} = g_0 \quad (6.106)$$

g_0 sera supposé réel. Le système précédent se réécrit :

$$\dot{\gamma}_\mu(t) = (i\omega_0 - \Gamma_0)\gamma_\mu - i(d_{2\mu} - d_{1\mu})g_0 E_0 \cdot e^{+i\omega_0 t} \quad (6.107)$$

$$\dot{d}_{1\mu}(t) = -i\gamma_\mu^* g_0 E_0 \cdot e^{+i\omega_0 t} + i\gamma_\mu g_0 E_0 \cdot e^{-i\omega_0 t} + \frac{d_{01} - d_{1\mu}}{T_r} \quad (6.108)$$

$$\dot{d}_{2\mu}(t) = -i\gamma_\mu g_0 E_0 \cdot e^{-i\omega_0 t} + i\gamma_\mu^* g_0 E_0 \cdot e^{+i\omega_0 t} + \frac{d_{02} - d_{2\mu}}{T_r} \quad (6.109)$$

Nous résolvons, à l'aide d'un solveur d'équations différentielles, le système ci-dessus. Nous obtenons pour la cohérence $\gamma_\mu(t)$ une équation indiquée en annexe. Afin de la résoudre, nous rappelons que $\gamma_\mu(t) = \bar{c}_2(t) \cdot c_3(t) \cdot e^{i\omega_0 t}$. Le produit quadratique $\gamma_0 = \bar{c}_2(t) \cdot c_3(t)$ est une fonction du temps variant très lentement par rapport à $e^{i\omega_0 t}$. Pour ce système à deux niveaux d'énergie électroniques auquel on applique des conditions d'inversions de populations non-saturées particulières (nous reviendrons sur l'acquisition de ces conditions), nous pouvons estimer qu'au bout de quelques T_r , γ_0 prend une valeur stationnaire et $\gamma_\mu(t) = \gamma_0 \cdot e^{+i\omega_0 t}$ oscille à la pulsation ω_0 . Nous introduisons cette dernière expression dans l'équation de $\gamma_\mu(t)$ donnée par notre solveur afin de pouvoir évaluer la quantité γ_0 . Nous obtenons ainsi l'équation :

$$\gamma_0 = \frac{i(d_{01} - d_{02})E_0 g_0}{4E_0^2 g_0^2 T_r + \Gamma_0} = \frac{i(d_{01} - d_{02})\omega_R}{2(\omega_R^2 T_r + \Gamma_0)} \quad (6.110)$$

Où nous avons défini la pulsation de Rabi $\omega_R = 2E_0 g_0$.

Nous obtenons pour l'inversion de populations $d_{2\mu}(t)$ une valeur stationnaire à la fin

de la première période (notée $d_{2\mu}(S)$) :

$$d_{2\mu}(S) = \frac{2T_r g_0^2 E_0^2 (d_{01} + d_{02}) + \Gamma_0 d_{02}}{4g_0^2 E_0^2 T_r + \Gamma_0} = \frac{1}{2} \frac{\omega_R^2 T_r (d_{01} + d_{02}) + 2\Gamma_0 d_{02}}{\omega_R^2 T_r + \Gamma_0} \quad (6.111)$$

Nous obtenons pour l'inversion de populations $d_{1\mu}(t)$ une valeur stationnaire à la fin de la première période (notée $d_{1\mu}(S)$) :

$$d_{1\mu}(S) = \frac{2T_r g_0^2 E_0^2 (d_{01} + d_{02}) + \Gamma_0 d_{01}}{4g_0^2 E_0^2 T_r + \Gamma_0} = \frac{1}{2} \frac{\omega_R^2 T_r (d_{01} + d_{02}) + 2\Gamma_0 d_{01}}{\omega_R^2 T_r + \Gamma_0} \quad (6.112)$$

Ces deux expressions ne diffèrent que par la substitution d'un chiffre 1 \longleftrightarrow 2. Nous allons donner une interprétation des quantités obtenues à la fin de la première période.

6.3.2 Interprétation de la décohérence entre les deux sous-niveaux

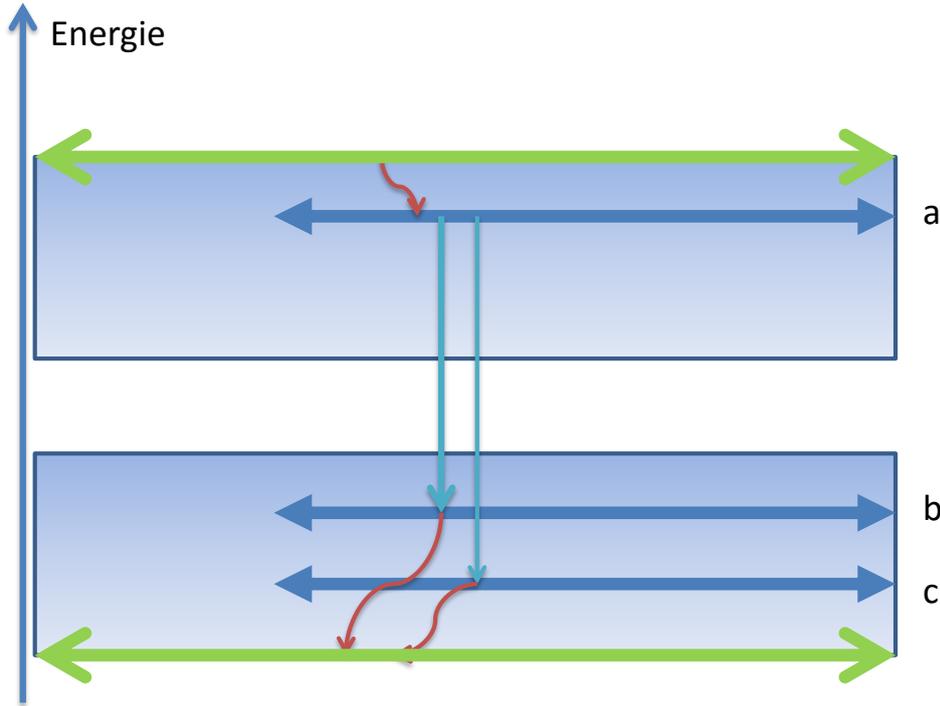
Nous commentons la figure (6.7). Nous adoptons les substitutions dans l'étiquetage des niveaux d'énergie des ions titane :

$$a \rightarrow 1 \quad b \rightarrow 2 \quad c \rightarrow 3 \quad (6.113)$$

Le niveau électronique a est "noyé" dans un continuum (dû à la vibronique du matériau) haut alors que les deux sous-niveaux électroniques bas b et c le sont dans un autre continuum. Le niveau fondamental est le plus bas de ce dernier continuum (double flèche verte la plus basse). Parce que nous particularisons deux états b et c associés à deux sous-niveaux électroniques, nous raisonnons bien sur une symétrie trigonale. La mise en évidence d'une capacité d'effet laser sans inversion de populations peut reposer sur une "injection de cohérence" entre ces deux sous-niveaux proches. En fait, la variable $\gamma_\mu(t)$ est mise en correspondance avec l'élément de matrice de la matrice densité ρ_{bc} qui acquiert une valeur non nulle quand le champ de cohérence $\mathcal{E}_0 = 2E_0$ est appliqué. Cependant une décohérence entre en jeu et agit selon un facteur $e^{-\Gamma_0 t}$ dans l'expression de l'élément de matrice. Nous avons identifié le paramètre de décohérence Γ_0 avec cette même fréquence de relaxation Γ_0 qui apparaît dans l'équation de $\gamma_\mu(t)$. Nous avons procédé à une telle identification en raison de la correspondance évoquée entre $\gamma_\mu(t)$ et ρ_{bc} . Quant aux expressions des grandeurs quantitatives obtenues à la sous-section (6.3.1), nous pouvons en donner une interprétation selon deux cas.

Premier cas : Γ_0 est plus grande que la quantité $\omega_R^2 T_r$ ($\Gamma_0 \gg \omega_R^2 T_r$).

Γ_0 domine pour ce cas. Cela signifie que l'"injection de cohérence" via un champ élec-



$$\rho_{bc}(t) = e^{-\Gamma_0 \cdot t} \cdot \dots$$

FIGURE 6.7 – Décohérence entre les deux sous-niveaux proches.

trique est "éteinte". Aussi les deux inversions de populations ne peuvent évoluer sous l'action du champ électrique \mathcal{E}_0 et leurs valeurs stationnaires restent égales à celles de départ qualifiées de non-saturées. Nous avons pour un tel cas :

$$d_{1\mu}(S) \cong d_{01} \quad d_{2\mu}(S) \cong d_{02} \quad \gamma_0 = \frac{i (d_{01} - d_{02}) \omega_R}{2 \Gamma_0} \quad (6.114)$$

Deuxième cas : Γ_0 est plus petite que la quantité $\omega_R^2 T_r$ ($\Gamma_0 \ll \omega_R^2 T_r$).

La décohérence entre les deux sous-niveaux ne joue plus. Les inversions de populations évoluent vers des valeurs de saturation ou stationnaires. Étant donné que nous n'avons retenu qu'une seule fréquence de relaxation pour les deux inversions de populations, ces dernières auront pour limite la moyenne des valeurs non-saturées :

$$d_{1\mu}(S) \cong \frac{d_{01} + d_{02}}{2} \quad d_{2\mu}(S) \cong \frac{d_{01} + d_{02}}{2} \quad \gamma_0 = \frac{i (d_{01} - d_{02})}{2 \omega_R T_r} \quad (6.115)$$

6.3.3 La méthode de l'équation "séculaire"

Nous nous plaçons en dessous du seuil de l'effet laser et nous linéarisons le problème (le système des équations de (6.82) à (6.87)). Nous exploitons les grandeurs suivantes :

$$\begin{aligned} \alpha_\mu = \mathbf{0} &\rightarrow \alpha_\mu + \delta\alpha_\mu & \beta_\mu = \mathbf{0} &\rightarrow \beta_\mu + \delta\beta_\mu & b_\lambda = \mathbf{0} &\rightarrow b_\lambda + \delta b_\lambda \\ d_{1\mu}(S) &\rightarrow d_{1\mu} + \delta d_{1\mu} & d_{2\mu}(S) &\rightarrow d_{2\mu} + \delta d_{2\mu} \end{aligned}$$

Nous négligeons les expressions quadratiques en δ . Nous obtenons le système en partant des équations (6.85) à (6.87) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \delta \dot{d}_{2\mu}(t) = -i\delta\gamma_\mu g_{\mu(2,3)} E_0 e^{-i\omega_{23}t} + i\delta\gamma_\mu^* g_{\mu(2,3)} E_0 e^{+i\omega_{23}t} - \frac{\delta d_{2\mu}}{T_r} \\ \delta \dot{d}_{1\mu}(t) = -i\delta\gamma_\mu^* g_{\mu(2,3)} E_0 e^{+i\omega_{23}t} + i\delta\gamma_\mu g_{\mu(2,3)} E_0 e^{-i\omega_{23}t} - \frac{\delta d_{1\mu}}{T_r} \\ \delta \dot{\gamma}_\mu(t) = (i\omega_{23} - \Gamma_{23}) \cdot \delta\gamma_\mu - i(\delta d_{2\mu} - \delta d_{1\mu}) g_{\mu(2,3)} E_0 e^{+i\omega_{23}t} \end{array} \right. \quad (6.116)$$

Nous ne continuerons pas à nous appuyer, plus en avant, sur les solutions pouvant être exhibées par un solveur d'équations différentielles (comme effectué à la sous-section (6.3.1)). Par contre, nous emploierons un argument physique. A la traversée du point de seuil, le mode du champ b_λ et les cohérences α_μ et β_μ auront une évolution dont la dynamique est cependant très lente, par contre $d_{1\mu}(S)$, $d_{2\mu}(S)$ et γ_0 avaient atteint un régime stationnaire. Il est alors plausible de considérer que les petites variations de ces dernières sont nulles. Nous gagnons :

$$\delta d_{1\mu}(T_r) = 0 \quad \delta d_{2\mu}(T_r) = 0 \quad \delta\gamma_0(T_r) = 0 \quad (6.117)$$

Nous nous plaçons à l'instant T_r . Nous écrivons les équations pour les variations de cohérences $\alpha_\mu(t)$ et $\beta_\mu(t)$ et la variation du mode de champ électrique $b_\lambda(t)$ (équations (6.82), (6.83) et (6.87)) en insérant les résultats des équations (6.117). Nous faisons l'hypothèse $\delta t \rightarrow 0$ soit $t \rightarrow T_r$.

$$\delta \dot{\alpha} = (i\omega_{12} - \Gamma_{12})\delta\alpha + i g_{\mu\lambda(1,2)} d_{1\mu} \delta b_\lambda - i\delta\beta g_{\mu(2,3)} E_0 e^{-i\omega_{23}T_r} - i g_{\mu\lambda(1,3)} \gamma_0^* e^{-i\omega_{23}T_r} \delta b_\lambda \quad (6.118)$$

$$\delta \dot{\beta} = (i\omega_{13} - \Gamma_{13})\delta\beta + i g_{\mu\lambda(1,3)} d_{2\mu} \delta b_\lambda - i\delta\alpha g_{\mu(2,3)} E_0 e^{+i\omega_{23}T_r} - i g_{\mu\lambda(1,2)} \gamma_0 e^{+i\omega_{23}T_r} \delta b_\lambda \quad (6.119)$$

$$\delta \dot{b}_\lambda = (i\omega_\lambda - \kappa_\lambda)\delta b_\lambda - i g_{\mu\lambda(1,2)} \sum_\mu \delta\alpha_\mu - i g_{\mu\lambda(1,3)} \sum_\mu \delta\beta_\mu \quad (6.120)$$

Dans les équations précédentes, nous avons supposé les trois constantes de couplage réelles et nous évaluons les grandeurs dans le cadre d'un élargissement homogène. Ces constantes de couplage sont alors indépendantes de l'indice μ , ainsi que les pulsations ω_{12} et ω_{13} . Nous supposons en outre :

$$b_\lambda \rightarrow b$$

$$S = \sum_{\mu} \alpha_{\mu} \quad V = \sum_{\mu} \beta_{\mu}$$

A partir des équations (6.118), (6.119) et (6.120), nous pouvons établir le système :

$$\left\{ \begin{array}{l} \delta \dot{S} = (i\omega_{12} - \Gamma_{12})\delta S - i g_{\mu(2,3)} \delta V E_0 e^{-i\omega_{23}T_r} + i (g_{\mu\lambda(1,2)} D_1 - g_{\mu\lambda(1,3)} \gamma_0^* N e^{-i\omega_{23}T_r}) \delta b \\ \delta \dot{V} = -i \delta S g_{\mu(2,3)} E_0 e^{+i\omega_{23}T_r} + (i\omega_{13} - \Gamma_{13})\delta V + i (g_{\mu\lambda(1,3)} D_2 - g_{\mu\lambda(1,2)} \gamma_0 N e^{+i\omega_{23}T_r}) \delta b \\ \delta \dot{b} = -i g_{\mu\lambda(1,2)} \delta S - i g_{\mu\lambda(1,3)} \delta V + (i\omega_{\lambda} - \kappa_{\lambda})\delta b \end{array} \right. \quad (6.121)$$

N désigne le nombre d'atomes du laser. Nous avons les abréviations $D_1 = N d_{1\mu}(T_r)$ et $D_2 = N d_{2\mu}(T_r)$. Pour résoudre ce système d'équations linéaires, nous faisons l'hypothèse habituelle pour la forme des oscillations amorties :

$$\begin{aligned} \delta S &= \delta S_0 \exp[(-i\Omega + \Gamma)t] & \delta V &= \delta V_0 \exp[(-i\Omega + \Gamma)t] \\ \delta b &= \delta b_0 \exp[(-i\Omega + \Gamma)t] \end{aligned} \quad (6.122)$$

Lorsque Γ est positif, nous dépassons le seuil à partir duquel l'effet laser a lieu. Nous injectons ces formes dans le système (6.121). Nous obtenons ainsi trois équations linéaires homogènes et algébriques pour δS_0 , δV_0 et δb_0 . Afin de trouver une solution non-triviale à ces équations, le déterminant du système doit être nul. Cette condition conduit alors à "une équation séculaire". Nous procédons ici comme dans le cas d'un système à deux niveaux électroniques.

$$\left(\begin{array}{ccc} i\omega_{12} - \Gamma_{12} + i\Omega - \Gamma & -i g_{\mu(2,3)} E_0 e^{-i\omega_{23}T_r} & i (g_{\mu\lambda(1,2)} D_1 - g_{\mu\lambda(1,3)} \gamma_0^* e^{-i\omega_{23}T_r} N) \\ -i g_{\mu(2,3)} E_0 e^{+i\omega_{23}T_r} & i\omega_{13} - \Gamma_{13} + i\Omega - \Gamma & i (g_{\mu\lambda(1,3)} D_2 - g_{\mu\lambda(1,2)} \gamma_0 e^{+i\omega_{23}T_r} N) \\ -i g_{\mu\lambda(1,2)} & -i g_{\mu\lambda(1,3)} & i\omega_{\lambda} - \kappa_{\lambda} + i\Omega - \Gamma \end{array} \right) = \mathcal{M} \quad (6.123)$$

Nous avons mené une évaluation analytique en posant les simplifications et notations

qui ne seront valables que dans la présente sous-section. Le fait de poser ω_{23} totalement à zéro est très critiquable. Cette pulsation est certes très inférieure aux autres pulsations du système à trois niveaux, mais bien plus grande que les fréquences de relaxation et de pompage de ce système. Nous nous autorisons ici cette supposition.

$$\begin{aligned} \Gamma_{12} &= \Gamma_{13} = \Gamma_1 \\ g_{\mu\lambda(1,2)} &= g_{\mu\lambda(1,3)} = g & g_{\mu(2,3)} &= g_0 \\ \omega_{23} &= 0 & \omega_\lambda &= \omega_{12} = \omega_{13} = \omega_1 \end{aligned} \quad (6.124)$$

\mathcal{M} devient alors :

$$\begin{pmatrix} i\omega_1 - \Gamma_1 + i\Omega - \Gamma & -ig_0E_0 & ig(D_1 - \gamma_0^*N) \\ -ig_0E_0 & i\omega - \Gamma_1 + i\Omega - \Gamma & ig(D_2 - \gamma_0N) \\ -ig & -ig & i\omega_1 - \kappa + i\Omega - \Gamma \end{pmatrix} = \mathcal{M} \quad (6.125)$$

L'extraction des deux inconnues Γ et Ω en prenant les parties réelle et imaginaire de ce déterminant aboutit à un système polynomial de degré 9 que nous ne savons pas résoudre analytiquement. La méthode employée pour la détermination du seuil de l'effet laser pour un système simple à deux niveaux d'énergie échoue dans le présent cas du système à trois niveaux. Pour résoudre le problème de la détermination du seuil de l'effet laser d'un système à trois niveaux, nous pouvons choisir de poser l'équation de van der Pol associée au mode du champ électrique b_λ . Nous tenterons d'exposer cette méthode ultérieurement et nous abandonnons ici la méthode par la nullité du déterminant de la matrice \mathcal{M} . Nous faisons un détour par le problème d'une configuration à trois niveaux électroniques d'énergie tel que traité par Scully et al.

6.4 Le système à trois niveaux selon Scully et al.

Nous rappelons que les notations γ_μ et γ_0 ont trait à la définition de cohérences dans le cadre du système à trois niveaux. Nous établirons une condition classique de seuil pour la population du niveau présentant le plus d'énergie, dans le cas sans irradiation infrarouge ou radiofréquence. Ensuite, nous réviserons cette condition lorsque le matériau actif du laser à état solide est irradié par un champ électrique de cohérence accordé à l'énergie de séparation des deux sous-niveaux proches.

6.4.1 Seuil classique pour une population sans faisceau de cohérence

Nous partons de l'analyse d'un système à trois niveaux qui pourrait fonctionner selon un effet laser sans inversion de populations. Cela se traduit généralement par un abaissement du seuil par rapport à la situation d'un système comparable à deux niveaux d'énergie. Nous avons des correspondances entre les nombres et les lettres indiquant les différents niveaux d'énergie.

$$|a\rangle \rightarrow 1 \quad |b\rangle \rightarrow 2 \quad |c\rangle \rightarrow 3$$

Nous posons l'équation pour l'amplitude du mode de champ électrique dans la cavité laser contenant le Ti :saphir. ω note la pulsation d'un tel champ électrique. Les éléments de matrice de l'opérateur moment dipolaire électrique entre les niveaux c/a et b/a seront pris réels et égaux à une valeur commune notée p . Nous distinguons entre les éléments d'une matrice de densité associée à un atome isolé qui sont sans unité et ceux correspondant à une matrice de population qui sont homogènes à L^{-3} . L'équation d'évolution pour l'amplitude du champ électrique s'évalue [39] :

$$\dot{\mathcal{E}}(t) = -\frac{\omega}{\epsilon_0} \text{Im} \left\{ e^{i\omega t} [p_{ca} \tilde{\rho}_{ac}(t) + p_{ba} \tilde{\rho}_{ab}(t)] \right\} \quad (6.126)$$

Dans notre situation, nous avons bien une matrice 3 x 3 de populations :

$$\tilde{\rho}(z, t) = \sum_{\alpha} \sum_{\beta} \int_{-\infty}^t dt_0 r_{\alpha}(z, t_0) \rho_{z, \alpha\beta}(t, t_0) |\alpha\rangle \langle \beta| \quad (6.127)$$

Les équations d'évolution pour les éléments de cette matrice de populations sont données comme suit :

$$\left\{ \begin{array}{l} \dot{\tilde{\rho}}_{ab} = -(i\omega_{ab} + \gamma_{ab}) \tilde{\rho}_{ab} - \frac{i}{2} \frac{p_{ab} \mathcal{E}(t)}{\hbar} e^{-i\omega t} (\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{bb}) + \frac{i}{2} \frac{p_{ac} \mathcal{E}(t)}{\hbar} e^{-i\omega t} \tilde{\rho}_{cb} \\ \dot{\tilde{\rho}}_{ac} = -(i\omega_{ac} + \gamma_{ac}) \tilde{\rho}_{ac} - \frac{i}{2} \frac{p_{ac} \mathcal{E}(t)}{\hbar} e^{-i\omega t} (\tilde{\rho}_{aa} - \tilde{\rho}_{cc}) + \frac{i}{2} \frac{p_{ab} \mathcal{E}(t)}{\hbar} e^{-i\omega t} \tilde{\rho}_{bc} \\ \dot{\tilde{\rho}}_{aa} = r_a \rho_{aa}^{(0)} - \gamma_a \tilde{\rho}_{aa} \\ \dot{\tilde{\rho}}_{bb} = r_b \rho_{bb}^{(0)} - \gamma_b \tilde{\rho}_{bb} \\ \dot{\tilde{\rho}}_{cc} = r_c \rho_{cc}^{(0)} - \gamma_c \tilde{\rho}_{cc} \\ \dot{\tilde{\rho}}_{bc} = r_c \rho_{bc}^{(0)} - (i\omega_{bc} + \gamma_{bc}) \tilde{\rho}_{bc} \end{array} \right. \quad (6.128)$$

Comme indiqué dans [51], nous n'avons pas inclut les termes d'interaction dans les équations pour $\tilde{\rho}_{aa}$, $\tilde{\rho}_{bb}$, $\tilde{\rho}_{cc}$ et $\tilde{\rho}_{bc}$ parce que nous ne sommes intéressés que par la théorie

linéaire. Les solutions à l'ordre zéro pour ces éléments de la matrice populations s'écrivent :

$$\left\{ \begin{array}{l} \tilde{\rho}_{aa} = \int_{-\infty}^t dt_0 e^{-\gamma_a(t-t_0)} r_a \rho_{aa}^{(0)} = \frac{r_a}{\gamma_a} \rho_{aa}^{(0)} \\ \tilde{\rho}_{bb} = \frac{r_a}{\gamma_b} \rho_{bb}^{(0)} \\ \tilde{\rho}_{cc} = \frac{r_a}{\gamma_c} \rho_{cc}^{(0)} \\ \tilde{\rho}_{bc} = \frac{r_a}{(\gamma_{bc} + i\omega_{bc})} \rho_{bc}^{(0)} \end{array} \right. \quad (6.129)$$

En substituant les équations (6.129) dans (6.128), nous obtenons les solutions :

$$\left\{ \begin{array}{l} \tilde{\rho}_{ab}(t) = -\frac{ir_a}{2\hbar} \int_{-\infty}^t dt_0 e^{-(i\omega_{ab} + \gamma_{ab})(t-t_0)} \mathcal{E}(t_0) e^{-i\omega t_0} \times \left\{ p_{ab} \left[\frac{\rho_{aa}^{(0)}}{\gamma_a} - \frac{\rho_{bb}^{(0)}}{\gamma_b} \right] - p_{ac} \frac{\rho_{cb}^{(0)}}{(\gamma_{bc} - i\omega_{bc})} \right\} \\ = -\frac{ir_a}{2\hbar} \frac{\mathcal{E}(t) e^{-i\omega t}}{\gamma_{ab} + i(\omega_{ab} - \omega)} \times \left\{ p_{ab} \left[\frac{\rho_{aa}^{(0)}}{\gamma_a} - \frac{\rho_{bb}^{(0)}}{\gamma_b} \right] - p_{ac} \frac{\rho_{cb}^{(0)}}{(\gamma_{bc} - i\omega_{bc})} \right\} \\ \tilde{\rho}_{ac}(t) = -\frac{ir_a}{2\hbar} \frac{\mathcal{E}(t) e^{-i\omega t}}{\gamma_{ac} + i(\omega_{ac} - \omega)} \times \left\{ p_{ac} \left[\frac{\rho_{aa}^{(0)}}{\gamma_a} - \frac{\rho_{cc}^{(0)}}{\gamma_c} \right] - p_{ab} \frac{\rho_{bc}^{(0)}}{(\gamma_{bc} + i\omega_{bc})} \right\} \end{array} \right. \quad (6.130)$$

Nous avons fait l'hypothèse d'une enveloppe, pour l'amplitude du champ électrique, lentement variable. En substituant ces solutions dans l'équation (6.126), nous gagnons la formule linéaire :

$$\dot{\mathcal{E}}(t) = \frac{1}{2} (\mathcal{A}_{aa} - \mathcal{A}_{bb} - \mathcal{A}_{cc} + \mathcal{A}_{bc} + \mathcal{A}_{cb}) \mathcal{E}(t) \quad (6.131)$$

où

$$\mathcal{A}_{aa} = \frac{\omega}{\epsilon_0 \hbar} r_a \left(\frac{\gamma_{ab}}{\gamma_{ab}^2 + \Delta^2} |p_{ab}|^2 + \frac{\gamma_{ac}}{\gamma_{ac}^2 + \Delta^2} |p_{ac}|^2 \right) \frac{\rho_{aa}^{(0)}}{\gamma_a} \quad (6.132)$$

$$\mathcal{A}_{bb} = \frac{\omega}{\epsilon_0 \hbar} r_a \frac{\gamma_{ab}}{\gamma_{ab}^2 + \Delta^2} |p_{ab}|^2 \frac{\rho_{bb}^{(0)}}{\gamma_b} \quad (6.133)$$

$$\mathcal{A}_{cc} = \frac{\omega}{\epsilon_0 \hbar} r_a \frac{\gamma_{ac}}{\gamma_{ac}^2 + \Delta^2} |p_{ac}|^2 \frac{\rho_{cc}^{(0)}}{\gamma_c} \quad (6.134)$$

$$\mathcal{A}_{bc} = \frac{\omega}{\epsilon_0 \hbar} r_a \operatorname{Im} \left[\frac{(\Delta + i\gamma_{ac})(i\omega_{bc} - \gamma_{bc})}{(\gamma_{ac}^2 + \Delta^2)(\omega_{bc}^2 + \gamma_{bc}^2)} p_{ca} p_{ab} \rho_{bc}^{(0)} \right] \quad (6.135)$$

$$\mathcal{A}_{cb} = \frac{\omega}{\epsilon_0 \hbar} r_a \operatorname{Im} \left[\frac{(\Delta - i\gamma_{ab})(i\omega_{bc} + \gamma_{bc})}{(\gamma_{ab}^2 + \Delta^2)(\omega_{bc}^2 + \gamma_{bc}^2)} p_{ba} p_{ac} \rho_{cb}^{(0)} \right] \quad (6.136)$$

avec

$$\Delta = \omega - \omega_{ab} = \omega_{ac} - \omega = \frac{\omega_{bc}}{2} \quad (6.137)$$

Le terme \mathcal{A}_{aa} qui est proportionnel à $\rho_{aa}^{(0)}$ désigne le gain linéaire. Il comprend deux parties associées aux processus d'émission du niveau $|a\rangle$ vers les deux sous-niveaux $|b\rangle$ et $|c\rangle$. Les termes \mathcal{A}_{bb} et \mathcal{A}_{cc} , qui sont proportionnels respectivement à $\rho_{bb}^{(0)}$ et $\rho_{cc}^{(0)}$, notent

les termes de pertes correspondant à l'absorption à partir des sous-niveaux $|b\rangle$ et $|c\rangle$ vers le niveau $|a\rangle$. Ces trois termes sont pris en compte dans la théorie semi-classique du laser à deux niveaux.

Nous supposons que nous disposons des inégalités suivantes entre les taux de décroissance des différents niveau et sous-niveaux :

$$\gamma_a \ll (\gamma_b \text{ et } \gamma_c) \quad (6.138)$$

Les deux quantités $\rho_{bb}^{(0)}$ et $\rho_{cc}^{(0)}$ sont ici supposées négligeables devant $\rho_{aa}^{(0)}$. Aussi, nous négligerons les termes d'absorption \mathcal{A}_{bb} et \mathcal{A}_{cc} devant le terme de gain linéaire \mathcal{A}_{aa} . Nous faisons aussi l'hypothèse (que nous ne pensons pas trop restrictive) que ces termes d'absorption sont négligeables devant les deux termes de cohérence \mathcal{A}_{bc} et \mathcal{A}_{cb} .

Nous admettons que le régime transitoire dû à l'application du champ électrique de cohérence infrarouge ou radiofréquence est dépassé (écoulement de la première période). Pour l'élément de matrice de la matrice densité, nous fixons un $t_i = 0$ (c'est-à-dire un temps initial pris à zéro) lorsque quelques T_r se sont écoulés. Ces valeurs ont été produites à la sous-section (6.3.1) :

$$\begin{aligned} d_{01}(S) &= \frac{1}{2} \frac{\omega_R^2 T_r (d_{01} + d_{02}) + 2\Gamma_0 d_{01}}{\omega_R^2 T_r + \Gamma_0} \\ d_{02}(S) &= \frac{1}{2} \frac{\omega_R^2 T_r (d_{01} + d_{02}) + 2\Gamma_0 d_{02}}{\omega_R^2 T_r + \Gamma_0} \\ \rho_{cb}^{(0)}(t_i = 0) &= \gamma_0 = \frac{i}{2} \frac{(d_{01} - d_{02})\omega_R}{\omega_R^2 T_r + \Gamma_0} \end{aligned} \quad (6.139)$$

Après quelques T_r , le champ de l'effet laser dans le matériau actif en T_i :saphir débute à zéro. Ce dernier et les éléments de la matrice de populations associés ($\tilde{\rho}_{ab}$ et $\tilde{\rho}_{ac}$) sont en évolution. En réintroduisant la constante des pertes pour l'amplitude du champ électrique de l'effet laser \mathcal{E} , nous posons alors :

$$\dot{\mathcal{E}}(t) = \left[-\kappa + \frac{1}{2} (\mathcal{A}_{aa} + \mathcal{A}_{bc} + \mathcal{A}_{cb}) \right] \mathcal{E} \quad (6.140)$$

Cette équation différentielle ordinaire linéaire maximise l'effet d'abaissement du seuil de l'effet laser dû aux deux seuls termes de cohérence \mathcal{A}_{bc} et \mathcal{A}_{cb} . Afin de comparer les différentes valeurs de seuil de l'effet laser, nous adoptons comme "paramètre d'inversion non-saturée" la quantité $\rho_{aa}^{(0)}$.

Lorsque la pulsation $\omega_R = 0$, la condition de seuil s'évalue comme :

$$-\kappa + \frac{1}{2} \mathcal{A}_{aa} > 0 \quad (6.141)$$

Nous adoptons les conventions d'écriture données ci-dessous. Nous faisons, en outre, les approximations suivantes permettant de comparer les deux situations ; systèmes à deux et trois niveaux électroniques d'énergie :

$$\gamma_{ab} = \gamma_{ac} = \Gamma = \Gamma_{12} \quad \omega_{bc} = \omega_0 = \omega_{23} \quad \gamma_{bc} = \Gamma_0 = \Gamma_{23}$$

Nous avons admis $p_{ab} = p_{ac} = p$.

$$\begin{aligned} -\kappa + \frac{\omega}{2\epsilon_0 \hbar} r_a \frac{\Gamma}{\Gamma^2 + \Delta^2} (p_{ab}^2 + p_{ac}^2) \frac{\rho_{aa}^{(0)}}{\gamma_a} > 0 \\ \rho_{aa}^{(0)} > \frac{2\kappa\epsilon_0 \hbar}{\omega r_a \Gamma} (\Gamma^2 + \Delta^2) \gamma_a \frac{1}{p_{ab}^2 + p_{ac}^2} \end{aligned} \quad (6.142)$$

Nous négligeons Γ devant Δ . Nous obtenons la condition de seuil recherchée lorsque $\omega_R = 0$:

$$\boxed{\rho_{aa}^{(0)} > \frac{\kappa\epsilon_0 \hbar \Delta^2 \gamma_a}{\omega r_a \Gamma p^2}} \quad (6.143)$$

La formule encadrée juste ci-dessus correspond à la condition de seuil en l'absence du champ d'habillage.

L'effet laser est favorisé quand les pertes de la cavité sont minimisées, la transition dipolaire électrique autorisée et le taux de décroissance du niveau haut faible. Nous comparons cette condition à celle obtenue lorsqu'un champ électrique infrarouge de cohérence est appliqué.

6.4.2 Seuil de l'effet laser lorsqu'un faisceau de cohérence opère

La condition de seuil, comprenant tous les processus (système à trois niveaux d'énergie), s'évalue à partir de l'expression suivante :

$$-\kappa + \frac{1}{2} (\mathcal{A}_{aa} - \mathcal{A}_{bb} - \mathcal{A}_{cc} + \mathcal{A}_{bc} + \mathcal{A}_{cb}) > 0 \quad (6.144)$$

Négliger \mathcal{A}_{bb} et \mathcal{A}_{cc} (notre hypothèse) consistera à considérer l'effet maximal possible d'abaissement du seuil de l'effet laser dû à \mathcal{A}_{bc} et \mathcal{A}_{cb} . Nous écrivons :

$$\mathcal{A}_{aa} > 2\kappa - \mathcal{A}_{bc} - \mathcal{A}_{cb} \quad (6.145)$$

Nous calculons la grandeur $\mathcal{S} = \mathcal{A}_{bc} + \mathcal{A}_{cb}$:

$$\mathcal{S} = \frac{\omega}{\epsilon_0 \hbar} r_a \operatorname{Im} \left[\frac{i}{(\Gamma^2 + \Delta^2)(\omega_0^2 + \Gamma_0^2)} \left\{ (\Delta + i\Gamma)(\omega_0 + i\Gamma_0) p_{ab} p_{ac} \rho_{cb}^{(0)*} + (\Delta - i\Gamma)(\omega_0 - i\Gamma_0) p_{ab} p_{ac} \rho_{cb}^{(0)} \right\} \right] \quad (6.146)$$

Nous posons $z = (\Delta - i\Gamma)(\omega_0 - i\Gamma_0) p_{ab} p_{ac} \rho_{cb}^{(0)} = x + iy$. Nous calculons :

$$\mathcal{S} = \frac{\omega}{\epsilon_0 \hbar} r_a \operatorname{Im} \left[\frac{i}{(\Gamma^2 + \Delta^2)(\omega_0^2 + \Gamma_0^2)} 2x \right] = \frac{2\omega}{\epsilon_0 \hbar} r_a \frac{x}{(\Gamma^2 + \Delta^2)(\omega_0^2 + \Gamma_0^2)} \quad (6.147)$$

Nous obtenons les égalités suivantes :

$$\mathcal{S} = \frac{\omega r_a (\Delta \Gamma_0 + \Gamma \omega_0) p^2 (d_{01} - d_{02}) \omega_R}{\epsilon_0 \hbar (\Gamma^2 + \Delta^2) (\omega_0^2 + \Gamma_0^2) (\omega_R^2 T_r + \Gamma_0)} \quad (6.148)$$

Nous réalisons les simplifications $\Gamma \ll \Delta$ et $\Gamma_0 \ll \omega_0$:

$$\mathcal{S} = \frac{2\omega r_a p^2 (d_{01} - d_{02}) \omega_R (\Gamma_0 + 2\Gamma)}{\epsilon_0 \hbar (T_r \omega_R^2 + \Gamma_0) \omega_0^3} \quad (6.149)$$

A partir de l'équation (6.145), nous évaluons :

$$\frac{\omega r_a p^2}{\epsilon_0 \hbar} \frac{\Gamma}{\Delta^2 \gamma_a} \rho_{aa}^{(0)} > \kappa - \frac{\omega r_a p^2 (d_{01} - d_{02}) \omega_R (\Gamma_0 + 2\Gamma)}{\epsilon_0 \hbar (T_r \omega_R^2 + \Gamma_0) \omega_0^3} \quad (6.150)$$

Nous réécrivons l'équation ci-dessus comme suit :

$$\rho_{aa}^{(0)} > \underbrace{\frac{\kappa \epsilon_0 \hbar \Delta^2 \gamma_a}{\omega r_a \Gamma p^2}}_{\text{Seuil sans champ de cohérence}} - \frac{\gamma_a \omega_R}{4\Gamma \omega_0} \frac{(\Gamma_0 + 2\Gamma)}{(T_r \omega_R^2 + \Gamma_0)} \cdot (d_{01} - d_{02}) \quad (6.151)$$

Nous allons mener des applications numériques à partir d'une telle équation et nous en donnerons des interprétations.

6.4.3 Applications numériques et interprétations

La fluence de saturation du Ti :saphir à 800 nm est de $J_S = 1 \text{ J.cm}^{-2}$. Nous constatons une méconnaissance de la spectroscopie du Ti :saphir à la longueur d'onde 17.02 μm . Nous interpolons que dans le spectre infrarouge lointain les fluences de saturation peuvent être bien supérieures à la valeur $J_S = 1 \text{ J.cm}^{-2}$. Aussi cette-dernière est une limite basse exploitée lors de nos applications numériques. Le mérite essentiel de cette sous-section est de bien mettre en exergue une telle méconnaissance.

Nous admettons que cette valeur $J_S = 1 \text{ J.cm}^{-2}$ a cours à la longueur d'onde infrarouge 17.02 μm , ce qui nous permettra de calculer une limite basse de l'amplitude du champ d'habillage. Nous posons les valeurs de fréquences de relaxation suivantes (T_r doit être supérieur à 1 ps d'un ordre de grandeur) :

$$\Gamma_0 = \Gamma = (1 \text{ ps})^{-1} \quad \gamma_a = (3.2 \text{ } \mu\text{s})^{-1} \quad T_r = 10 \text{ ps} \quad (6.152)$$

Nous examinons deux cas. Nous désignons par τ les durées de l'impulsion issue du laser infrarouge qui progresse dans le matériau actif de Ti :saphir :

$$\tau_1 = 100 \text{ ps} \quad \tau_2 = 1 \text{ ns} \quad (6.153)$$

Nous avons la relation $\epsilon_0 \cdot \frac{\mathcal{E}^2}{2} = \frac{J_S}{\tau c}$. Nous évaluons pour les deux cas de durée d'impulsion τ l'abaissement du seuil de l'effet laser proportionnel à $(d_{01} - d_{02})$ et comparé à $\rho_{aa}^{(0)}$.

*Cas n°1 : $g_0 = \frac{\theta_{23}}{\hbar}$. Nous supposons que l'ordre de grandeur du moment dipolaire électrique entre les deux sous-niveaux est non-nul et comparable à celui entre les niveaux E_g et T_{2g} calculé au chapitre (3). $\theta_{23} = C_1 \cdot e = 4.755 \times 10^{-12} \cdot e = 7.61751 \times 10^{-31} \text{ C} \cdot \text{m}$. Nous calculons alors une valeur pour $g_0 = 7220 \text{ C.kg}^{-1} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}$. Pour la durée de 100 ps, le champ électrique $\mathcal{E}_1 = 2.74495 \times 10^8 \text{ V/m}$. La pulsation de Rabi est donc égale à $\omega_{R1} = 1.9819 \times 10^{12} \text{ Hz}$.

Nous introduisons le critère \mathcal{C}_r :

$$\mathcal{C}_r = \frac{\omega_R^2 T_r}{\Gamma_0} \quad (6.154)$$

Pour notre cas $\mathcal{C}_r = 39.28$. L'abaissement du seuil s'évalue donc par la formule :

$$-\frac{3\gamma_a \omega_R}{4\Gamma} \frac{1}{\omega_0} \frac{1}{1 + \mathcal{C}_r} \cdot (d_{01} - d_{02}) \quad (6.155)$$

Numériquement, ce cas fournit un abaissement de $-1.0429 \times 10^{-10} \cdot (d_{01} - d_{02})$.

*Cas n°2 : $g_0 = 7220 \text{ C.kg}^{-1} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{s}$. Pour la durée d'impulsion 1 ns, le champ électrique $\mathcal{E}_2 = 8.6803 \times 10^7 \text{ V/m}$. La pulsation de Rabi est donc égale à $\omega_{R2} = 6.2675 \times 10^{11} \text{ Hz}$. Le critère introduit au cas n°1 s'évalue alors comme suit : $\mathcal{C}_r = 3.9282$. Nous calculons l'abaissement du seuil proportionnel à $(d_{01} - d_{02})$.

Numériquement, ce cas fournit un abaissement de $-2.6958 \times 10^{-10} \cdot (d_{01} - d_{02})$. Nous avons un abaissement plus prononcé pour le cas n°2. Cela est dû à la non-linéarité calculée exactement pour cet abaissement en le facteur :

$$\frac{\omega_R}{1 + \frac{\omega_R^2 \Gamma r}{\Gamma_0}}$$

Nous évaluons la pulsation de Rabi produisant l'abaissement maximal du seuil. Tous calculs faits, il est atteint pour la pulsation de Rabi $\omega_{R3} = 3.1623 \times 10^{11} \text{ Hz}$. Le critère $\mathcal{C}_r = 1$. La valeur numérique de l'abaissement maximal est alors : $-3.352 \times 10^{-10} \cdot (d_{01} - d_{02})$. Cette pulsation de Rabi correspond à une durée d'impulsion τ de 4 ns environ. Nous savons que cette valeur de durée d'impulsion est atteinte par les lasers fonctionnant dans l'infrarouge lointain (par exemple en exploitant la technologie du Q-switch).

Nous commentons l'expression (6.155). Sous la réserve de l'égalité des grandeurs Γ et Γ_0 , nous constatons que plus ces dernières sont faibles, plus l'abaissement du seuil est important. Cela est à mettre en correspondance avec un abaissement de la puissance de pompage calculée au chapitre (5) lorsque la fréquence de relaxation entre les deux niveaux électroniques est basse. Le maximum d'abaissement du seuil est ici atteint lorsque le critère $\mathcal{C}_r = 1$. Nous voyons apparaître le facteur $\frac{1}{\omega_0}$. Aussi, il est clair que le phénomène ici examiné est plus important lorsque l'énergie de séparation entre les deux sous-niveaux proches est du type radiofréquence. Cela explique que sa vérification expérimentale a pu avoir lieu pour les valeurs radiofréquences de transitions atomiques entre les sous-niveaux. Nous donnons des références sur ces acquis expérimentaux dans le chapitre 7 de conclusion. Nous constatons qu'une faible valeur de γ_a n'encourage pas un abaissement prononcé du seuil, mais nous ne souhaitons pas trop agir sur cette quantité parce que le seuil sans habillage des deux sous-niveaux proches est directement proportionnel à γ_a . Nous avons ici supposé que $d_{01} - d_{02} > 0$. Nous allons essayer de l'évaluer correctement.

6.4.4 Une condition nécessaire sur les inversions de populations

Nous avons l'expression suivante, obtenue à partir des équations (6.11) :

$$d_{01} - d_{02} = |c_3|_0^2 - |c_2|_0^2 \quad (6.156)$$

Nous voulons vérifier que l'expression ci-dessus est positive. cette expression est obtenue après pompage entre les niveaux fondamental et le plus haut (voir la figure(6.2)). La fluorescence qui en résulte peuple les populations $|c_3|_0^2$ et $|c_2|_0^2$. Nous ne traitons ici que de la cinétique de pompage (sans lumière dans la cavité à état solide). Nous savons que la probabilité de transition par unité de temps pour l'émission spontanée d'un atome isolé est fonction du cube de la fréquence. Nous aurons donc les relations :

$$|c_3|_0^2 \propto \nu_{ac}^3 \quad |c_2|_0^2 \propto \nu_{ab}^3 \quad (6.157)$$

Parce que les séparations en énergie/fréquence sont ordonnées comme suit :

$$\nu_{ac} > \nu_{ab} \quad (6.158)$$

nous pourrions affirmer que $d_{01} - d_{02} > 0$. Néanmoins les formules des populations des niveaux b et c doivent tenir compte de la forme spectrale, fonction du facteur de Condon, appliquée lors de l'émission spontanée. Le cas le plus défavorable à l'établissement de la condition ci-dessus est de poser (avec des notations évidentes) : $\lambda_{ab} \rightarrow 800$ nm et $\lambda_{ac} \rightarrow 764$ nm. Nous nous plaçons à la température ambiante (300 K). Le facteur de Condon approché est donné par l'équation (3.72) :

$$W_p \simeq \left(4\pi kT \frac{S}{\hbar\omega_l}\right)^{-0.5} \exp\left(-\frac{(p-S)^2 \hbar\omega_l}{4kTS}\right) \quad (6.159)$$

$S = 11.25$ et $\hbar\omega_l = 392$ cm⁻¹. Le nombre continu de quanta de phonons effectifs p a pour expression (équation (3.90)) :

$$p = \frac{E_0 - \frac{hc}{\lambda}}{\hbar\omega_l} \quad (6.160)$$

E_0 est l'énergie de la ligne à zéro phonon ($E_0 = 2.01$ eV). Nous avons la formule :

$$|c_i|_0^2 \propto \left(\frac{1}{\lambda_i}\right)^3 \cdot W_p \left(p = \frac{E_0 - \frac{hc}{\lambda_i}}{\hbar\omega_l}\right) \quad (6.161)$$

Numériquement, nous obtenons : $\frac{|c_3|_0^2}{|c_2|_0^2} \approx 0.83$. Nous constatons que la condition nécessaire n'est pas respectée.

Si nous adoptons le cas plus favorable : $\lambda_{ab} \rightarrow 839$ nm et $\lambda_{ac} \rightarrow 800$ nm, l'application numérique donne : $\frac{|c_3|_0^2}{|c_2|_0^2} = 1.0121 = r$. La condition nécessaire est alors bien respectée, mais la différence $d_{01} - d_{02}$ sera ici très faible. Savoir si un effet d'abaissement de seuil est prédit demeure problématique eu égard à la correction par la forme spectrale de la loi en fréquence au cube.

Nous rappelons que les deux couples de longueurs d'onde correspondent chacun à une séparation en énergie de 587 cm^{-1} positionnés de part et d'autre des "versants" de la courbe de fluorescence. Aussi, pour notre problème, l'influence de la forme spectrale est primordiale et devra être examinée lors de travaux postérieurs à cet exposé. Les effets de la température et de la largeur de la bande passante en émission parce qu'elles conditionnent la forme spectrale devront de même être pris en compte dans l'établissement de la condition $d_{01} - d_{02} > 0$. Nous allons évaluer la correction à la probabilité de pompage de ce système à trois niveaux électroniques.

6.4.5 Correction apportée à la probabilité de pompage et conclusions partielles

La différence pondérée de populations seuil vaut $D_{\text{seuil}} = 2.23 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. La différence pondérée issue de la cinétique de pompage s'exprime selon la formule :

$$D_p = n \cdot \frac{1}{1 + \frac{\beta}{\epsilon}} \quad \frac{\beta}{\epsilon} = \frac{A_{21}}{\mathcal{P}} \quad (6.162)$$

$n = 3.3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ et $A_{21} = (3.2 \times 10^{-6})^{-1} \text{ Hz}$. Nous calculons que la probabilité de pompage au seuil (qui compense les pertes de la cavité) s'évalue comme suit : $\mathcal{P}_{\text{seuil}} = 2127 \text{ Hz}$. Elle est inférieure à la valeur des 5000 Hz prise au début de notre évaluation.

Nous connaissons la cinétique de pompage de ce système à quatre et à cinq niveaux. Avant l'établissement d'émissions stimulées et au cours du pompage, nous disposons des relations suivantes pour des grandeurs relatives à la figure (6.6) :

$$(n_1)_P = \frac{1}{A_{10}} \frac{\mathcal{P}}{1 + \frac{A_{30}}{A_{32}}} \cdot (n_0)_P \simeq \frac{\mathcal{P}}{A_{10}} \cdot (n_0)_P \quad (n_2)_P = \frac{1}{A_{21}} \frac{\mathcal{P}}{1 + \frac{A_{30}}{A_{32}}} \cdot (n_0)_P \simeq \frac{\mathcal{P}}{A_{21}} \cdot (n_0)_P \quad (6.163)$$

Nous savons que la population du niveau fondamental est surabondante, ce qui est transcrit par l'égalité $(n_0)_P \simeq n$. Aussi, les populations des niveaux impliqués dans l'effet laser

du Ti :saphir s'évaluent :

$$\rho_{aa}^{(0)} = \frac{\mathcal{P}}{A_{21}} \quad (6.164)$$

$$\begin{aligned} \rho_{bb}^{(0)} + \rho_{cc}^{(0)} &= \frac{\mathcal{P}}{A_{10}} = |c_2|_0^2 (1+r) \\ |c_2|_0^2 &= \frac{\mathcal{P}}{A_{10}(1+r)} \\ d_{01} - d_{02} &= \left(\frac{r-1}{r+1} \right) \frac{\mathcal{P}}{A_{10}} \end{aligned} \quad (6.165)$$

Nous pouvons donc calculer la probabilité de pompage corrigée lorsqu'un champ infra-rouge de cohérence opère entre les deux sous-niveaux proches :

$$\begin{aligned} \frac{\mathcal{P}_{cr}}{A_{21}} &> \frac{\mathcal{P}_{seuil}}{A_{21}} - \frac{\gamma_a \omega_R}{4\Gamma \omega_0} \frac{(\Gamma_0 + 2\Gamma)}{(T_r \omega_R^2 + \Gamma_0)} \cdot \frac{(r-1)}{(r+1)} \frac{\mathcal{P}_{cr}}{A_{10}} \\ \mathcal{P}_{cr} &> \mathcal{P}_{seuil} - \frac{\gamma_a^2 \omega_R}{4\Gamma \omega_0} \frac{(\Gamma_0 + 2\Gamma)}{(T_r \omega_R^2 + \Gamma_0)} \cdot \frac{(r-1)}{(r+1)} \frac{\mathcal{P}_{cr}}{A_{10}} \\ \mathcal{P}_{cr} &> \frac{\mathcal{P}_{seuil}}{1 + \frac{\gamma_a^2 \omega_R}{4\Gamma \omega_0} \frac{(\Gamma_0 + 2\Gamma)}{(T_r \omega_R^2 + \Gamma_0)} \cdot \frac{(r-1)}{(r+1)} \frac{1}{A_{10}}} = \frac{\mathcal{P}_{seuil}}{1+U} \end{aligned} \quad (6.166)$$

Nous évaluons la grandeur U. Nous avons calculé $U = 3.15 \times 10^{-18}$. Pour notre expérience, la correction à la probabilité de pompage est insignifiante. Il s'avérerait que l'application de la théorie de l'effet laser sans inversion de populations dans le cas d'un laser Ti :saphir ne soit pas pertinente. Nous allons investiguer un autre calcul selon la méthode de H.Haken afin d'essayer de trancher définitivement. Nous concluons aussi, sous réserve de créer une différence d'inversions de populations importante ($d_{01} - d_{02} > 0$), que la probabilité de pompage seuil est abaissée par le facteur U, qui s'évalue comme suit, dans le cas recherché d'une décohérence très forte entre les deux sous-niveaux proches :

$$U = \frac{\gamma_a^2 \omega_R}{4\Gamma \omega_0} \frac{1}{A_{10}} \frac{(r-1)}{(r+1)} \quad (6.167)$$

Des valeurs appréciables de cette grandeur seraient possibles pour une pulsation de Rabi intense (une transition dipolaire électrique autorisée va dans ce sens) et une transition atomique entre les deux sous-niveaux proches de nature radiofréquence. Une révision de l'ensemble des fréquences de relaxation est menée pour ce cas plus favorable dit

radiofréquence; nous continuons à nous placer dans le cas $\Gamma_0 \ll \omega_0$ et $\Gamma \ll \omega_0$:

$$\begin{aligned} \gamma_a &= 10^9 \text{ Hz} & \omega_R &= 10^7 \text{ Hz} & \omega_0 &= 10^9 \text{ Hz} \\ \Gamma_0 &= 10^8 \text{ Hz} & \Gamma &= 10^8 \text{ Hz} & T_r &= 10^{-8} \text{ s} \end{aligned} \quad (6.168)$$

U vaut alors $\frac{1}{4}$ selon la formule (6.167) (nous n'avons pas retenu l'expression du ratio $\frac{r-1}{r+1}$). Nous avons bien les deux inégalités : $\Gamma_0 \ll \omega_0$ et $\Gamma \ll \omega_0$. Les inégalités sur les taux de décroissance de l'ensemble des niveaux a,b et c ne sont pas ici satisfaites. De même, l'inégalité $\Gamma \ll \Gamma_0$ exprimant le fait que la décohérence entre les deux sous-niveaux proches domine n'est pas vérifiée pour notre calcul du facteur U. Par contre, nous vérifions : $\omega_R^2 T_r = 10^6 \text{ Hz} \ll \Gamma_0$. La valeur relativement modeste de la pulsation de Rabi pour une transition radiofréquence autorisée se traduira par une valeur faible de l'amplitude du champ électrique appliqué entre les deux sous-niveaux proches, sans effets non-linéaires. Nous pensons qu'elle est tout à fait atteignable par les technologies radiofréquence actuelles. Nous avons ici supposé un matériau présentant une structure fine (donc avec une transition atomique de nature radiofréquence gouvernée par un moment dipolaire électrique autorisé). Une valeur appréciable de γ_a augmenterait la valeur numérique de la puissance de pompage seuil lorsque le faisceau de cohérence n'opère pas. Cela ne constitue pas une réponse adéquate.

Nous constatons que le vidage par la relaxation vibronique du niveau c vers le niveau fondamental (représenté par la fréquence A_{10}) est très pénalisant pour la capacité effective d'un effet laser sans inversion de populations pour le Ti :saphir. Nous comprenons mieux les raisons des succès de la mise en évidence de l'effet laser sans inversion de populations pour les lasers à niveaux discrets (gaz et autres) accompagnés d'un champ électrique, entrant dans la formulation de la pulsation de Rabi, de nature radiofréquence. Une perspective pour cette capacité est envisageable dans le cas des ions terres-rares dilués dans des matrices cristallines où le vidage représenté par A_{10} serait vraiment moindre (le resserrement de la bande passante expliquerait que la fréquence de vidage A_{10} diminue). En outre, il faudrait exploiter une transition atomique radiofréquence pouvant être issue d'une structure fine et gouvernée par un moment dipolaire électrique autorisé. Nous bénéficierions alors d'un effet laser sans inversion de populations permettant d'obtenir une baisse significative de la puissance de pompe dans les longueurs d'onde visibles.

Nous examinons un autre cas. Nous constatons que celui défini par $\omega_0 \ll \{\Gamma \text{ et } \Gamma_0\}$

fournit l'évaluation (\mathcal{S} est définie en (6.148)) :

$$\mathcal{S} = \frac{\omega r_a \omega_0 (\Gamma_0 + 2\Gamma) p^2 (d_{01} - d_{02}) \omega_R}{2\epsilon_0 \hbar \Gamma^2 \Gamma_0^2 (\omega_R^2 T_r + \Gamma_0)} \quad (6.169)$$

Afin de fixer les idées, nous choisissons les nouvelles valeurs des fréquences et des différentes pulsations comme suit :

$$\begin{aligned} \gamma_a &= 10^6 \text{ Hz} & \omega_R &= 0.3 \times 10^9 \text{ Hz} & \omega_0 &= 10^{10} \text{ Hz} \\ \Gamma_0 &= 10^{12} \text{ Hz} & \Gamma &= 10^{11} \text{ Hz} & T_r &= 10^{-11} \text{ s} \end{aligned} \quad (6.170)$$

Nous donnons l'évaluation de ω_R . Nous avons la relation $\omega_R = \frac{p\mathcal{E}}{\hbar}$. Nous estimons $\mathcal{E} = 1 \text{ MV/m}$. p est approché par 0.01 D . Nous obtenons bien la valeur approchée $\omega_R \approx 0.3 \times 10^9 \text{ Hz}$. Nous pouvons négliger $\omega_R^2 T_r$ devant Γ_0 . Nous posons la formule approchée pour \mathcal{S} :

$$\mathcal{S} = \frac{\omega r_a \omega_0 p^2 (d_{01} - d_{02}) \omega_R}{2\epsilon_0 \hbar \Gamma^2 \Gamma_0^2} \quad (6.171)$$

L'inégalité $\mathcal{A}_{aa} > 2\kappa - \mathcal{A}_{bc} - \mathcal{A}_{cb}$ se traduit par :

$$\rho_{aa}^{(0)} > \frac{\kappa \epsilon_0 \hbar \Gamma \gamma_a}{\omega r_a p^2} - \frac{\omega_0 \gamma_a (d_{01} - d_{02}) \omega_R}{4\Gamma \Gamma_0^2} \quad (6.172)$$

Le premier terme du membre droit de l'inégalité ci-dessus correspond au seuil sans "irradiation" radiofréquence. Le second correspond à la correction apportée lorsque cette irradiation est appliquée. Nous pouvons poser :

$$\frac{\mathcal{P}_{cr}}{\gamma_a} > \frac{\mathcal{P}_{seuil}}{\gamma_a} - \frac{\omega_0 \gamma_a \omega_R}{4\Gamma \Gamma_0^2} \cdot \frac{\mathcal{P}_{cr}}{A_{10}} \quad (6.173)$$

Cela se réécrit comme suit :

$$\mathcal{P}_{cr} > \frac{\mathcal{P}_{seuil}}{1 + \frac{\omega_0 \gamma_a^2 \omega_R}{4\Gamma \Gamma_0^2 A_{10}}} \quad (6.174)$$

Nous dégageons le facteur $U' = \frac{\omega_0 \gamma_a^2 \omega_R}{4\Gamma \Gamma_0^2 A_{10}}$. Lorsque $A_{10} = 10^{12} \text{ Hz}$, le facteur U' s'évalue à 7.5×10^{-18} , ce qui est insignifiant. Nous trouvons que ce cas ($\omega_0 \ll \{\Gamma \text{ et } \Gamma_0\}$) ne produit pas un abaissement significatif du seuil de l'effet laser.

Le cas pertinent pour notre thématique est ainsi défini par la condition $\omega_0 \gg \{\Gamma \text{ et } \Gamma_0\}$. Nous concluons partiellement qu'il est possible de produire un effet d'abaissement du

seuil si les fréquences de relaxation ne sont pas de nature vibronique (mais correspondant à des fréquences de systèmes atomiques discrets) et si les deux sous-niveaux proches ont une séparation en énergie de l'ordre de grandeur radiofréquence gouvernée par un moment dipolaire électrique convenable ou autorisé. Il faudra chercher un matériau candidat respectant de telles caractéristiques. Nous allons présenter une autre tentative de détermination d'un abaissement du seuil de l'effet laser sous irradiation entre deux sous-niveaux proches. Nous adaptons un calcul selon H.Haken quant à l'établissement d'une equation de van der Pol.

6.5 Une adaptation du calcul de H.Haken

Nous résolvons notre problème en évaluant les cohérences α_μ et β_μ au cours de la seconde période (après quelques T_r). L'équation d'évolution du mode de champ électrique, dans la cavité présentant un matériau actif en Ti :saphir, comprend la cohérence γ_μ en plus des cohérences α_μ et β_μ .

6.5.1 Solutions pour les cohérences α_μ et β_μ

L'évolution des inversions de populations irradiées par un champ électrique de cohérence est gouvernée par la constante de temps de Bloch T_r provenant d'un réservoir qui entretient un phénomène de dissipation. Ces inversions de populations tendent donc vers des valeurs stationnaires en un temps donné par quelques T_r .

Le champ de l'effet laser entre le niveau 1 et les deux sous-niveaux 2 et 3 est pris à la condition de seuil où nous pouvons estimer que son évolution dynamique est lente alors que celles des inversions de populations et celle de la grandeur γ_0 entre les deux sous-niveaux sont constantes.

In fine, nous essaierons de voir le déclenchement lorsque nous dépassons le seuil. Dans nos solutions, nous serons peut-être amené à faire la simplification $\delta t \rightarrow 0$ comme déjà effectuée lors de la tentative de détermination du seuil par l'approche des petites variations et de l'équation séculaire (section 6.3.3). Les équations de la matière pour les deux cohérences restantes $\alpha_\mu(t)$ et $\beta_\mu(t)$ permettent d'écrire :

$$\dot{\alpha}_\mu(t) = (i\omega - \Gamma)\alpha_\mu + id_{1\mu}(S)gb_\lambda - i\beta_\mu g_0 E_0 e^{-i\omega_0 t} - i\gamma_0^* e^{-i\omega_0 t} gb_\lambda \quad (6.175)$$

$$\dot{\beta}_\mu(t) = (i\omega - \Gamma)\beta_\mu + id_{2\mu}(S)gb_\lambda - i\alpha_\mu g_0 E_0 e^{i\omega_0 t} - i\gamma_0 e^{i\omega_0 t} gb_\lambda \quad (6.176)$$

Nous rappelons l'ensemble des notations de notre problème valables pour cette sous-section :

$$\begin{aligned}\omega_{12} = \omega_{13} = \omega \quad \Gamma_{12} = \Gamma_{13} = \Gamma \quad g_{\mu\lambda(1,2)} = g_{\mu\lambda(1,3)} = g \\ g_{\mu(2,3)} = g_0 \quad \omega_{23} = \omega_0\end{aligned}$$

Les constantes de couplages g et g_0 seront prises réelles.

$\alpha_\mu(t)$ et $\beta_\mu(t)$ devraient évoluer sensiblement comme $b_\lambda(t) = \tilde{b}_\lambda(t)e^{i\Omega t}$. La fréquence prépondérante dans le spectre des cohérences en question est Ω (la fréquence du mode de la cavité chargée du laser). Nous avons alors les résultats approchés :

$$\dot{\alpha}_\mu(t) = i\Omega\alpha_\mu \quad \dot{\beta}_\mu(t) = i\Omega\beta_\mu \quad (6.177)$$

Nous pouvons poser le système d'équations :

$$(-id_{1\mu}(S) + i\gamma_0^* e^{-i\omega_0 t})gb_\lambda = (i(\omega - \Omega) - \Gamma)\alpha_\mu - ig_0E_0e^{-i\omega_0 t}\beta_\mu \quad (6.178)$$

$$(-id_{2\mu}(S) + i\gamma_0 e^{i\omega_0 t})gb_\lambda = -i\alpha_\mu g_0 E_0 e^{i\omega_0 t} + (i(\omega - \Omega) - \Gamma)\beta_\mu \quad (6.179)$$

Nous obtenons les solutions complexes suivantes (avec la notation $b_\lambda = b$) :

$$\alpha_\mu = \frac{gb(E_0 e^{-i\omega_0 t} g_0 d_{2\mu}(S) - i\gamma_0^* e^{-i\omega_0 t} \Gamma - E_0 \gamma_0 g_0 + id_{1\mu}(S)\Gamma)}{E_0^2 g_0^2 + \Gamma^2} \quad (6.180)$$

$$\beta_\mu = -ibg \frac{(-iE_0 \gamma_0^* g_0 + iE_0 e^{i\omega_0 t} g_0 d_{1\mu}(S) + e^{i\omega_0 t} \gamma_0 \Gamma - \Gamma d_{2\mu}(S))}{E_0^2 g_0^2 + \Gamma^2} \quad (6.181)$$

Nous avons posé la simplification $\Omega = \omega$. Les fonctions de cohérence $\alpha_\mu(t)$ et $\beta_\mu(t)$ sont proportionnelles au mode de champ électrique $b_\lambda(t)$, dans le matériau actif en Ti:saphir, à des fonctions près variant lentement à la pulsation ω_0 . Cela est consistant avec l'hypothèse physique (6.177). Ces cohérences sont ici indépendantes de l'indice μ . Dans les notations des constantes de couplage et du mode de champ, nous avons omis les indices μ et λ ; cela ne saurait nuire à notre exploitation des équations.

Nous dépassons la première période de temps. Au cours d'une seconde période de temps, une dynamique lente sera observée parce que nous nous situons initialement au

seuil de l'effet laser. Les grandeurs α_μ , β_μ et b_λ évolueront donc très lentement. Nous rap- pelons les résultats acquis à la fin de la première période de temps :

$$d_{1\mu}(S) = \frac{1}{2} \frac{\omega_R^2 T_r (d_{01} + d_{02}) + 2\Gamma_0 d_{01}}{\omega_R^2 T_r + \Gamma_0} \quad (6.182)$$

$$d_{2\mu}(S) = \frac{1}{2} \frac{\omega_R^2 T_r (d_{01} + d_{02}) + 2\Gamma_0 d_{02}}{\omega_R^2 T_r + \Gamma_0} \quad (6.183)$$

$$\gamma_0 = \frac{i (d_{01} - d_{02}) \omega_R}{2 (\omega_R^2 T_r + \Gamma_0)} \quad (6.184)$$

Nous allons poser l'équation de van der Pol afin de déterminer la condition de seuil de l'effet laser en présence du champ de cohérence caractérisé par la pulsation de Rabi ω_R .

6.5.2 La condition de seuil de l'effet laser revisitée

Nous exploitons l'équation du mode de champ pour un système à trois niveaux :

$$\dot{b} = (i\omega_\lambda - \kappa_\lambda)b - ig \sum_\mu (\alpha_\mu + \beta_\mu) - ig_{\mu 1} N \gamma_0 e^{i\omega_0 t} \quad (6.185)$$

Nous établissons une équation de van der Pol pour la seule partie linéaire en le mode de champ électrique. Nous substituons donc les équations (6.182), (6.183) et (6.184) dans les équations (6.180) et (6.181). Nous obtenons la somme des cohérences indépendante de l'indice mu :

$$\begin{aligned} -ig(\alpha_\mu + \beta_\mu) &= bg^2 [\{\sigma \times i\} + \{\theta\}] & \sigma &= -\frac{1}{2} \frac{(d_{01} + d_{02}) \omega_R \cos(\omega_0 t)}{\frac{1}{4} \omega_R^2 + \Gamma^2} \\ \theta &= \frac{\frac{\omega_R}{2} (\Gamma_0 + 2\Gamma) (d_{01} - d_{02}) \sin(\omega_0 t) + \Gamma (d_{01} + d_{02}) (\Gamma_r \omega_R^2 + \Gamma_0)}{\left(\frac{\omega_R^2}{4} + \Gamma^2\right) (\omega_R^2 T_r + \Gamma_0)} \end{aligned} \quad (6.186)$$

Les contributions provenant des fonctions sinus et cosinus sont négligées parce que l'intégration de ces fonctions introduit un facteur en $\frac{1}{\omega_0}$ négligeable par rapport à la pulsation de Rabi ω_R . Les équations (6.186) se simplifient comme suit :

$$\begin{aligned} \sigma &= 0 \\ \theta &= \frac{4\Gamma (d_{01} + d_{02})}{\omega_R^2 + 4\Gamma^2} \end{aligned} \quad (6.187)$$

En posant les notations : $D_{01} = Nd_{01}$ et $D_{02} = Nd_{02}$, nous avons le résultat :

$$\dot{b} = (i\omega_\lambda)b + \left(-\kappa_\lambda + \frac{4\Gamma(D_{01} + D_{02})}{\omega_R^2 + 4\Gamma^2} g^2 \right) b - ig_{\mu 1} N \gamma_0 e^{i\omega_0 t} \quad (6.188)$$

Lorsque la pulsation de Rabi est nulle, nous retrouvons la condition de seuil dégagée au chapitre (5) :

$$-\kappa_\lambda + \frac{(D_{01} + D_{02})g^2}{\Gamma} > 0 \quad D_{01} + D_{02} > \frac{\kappa_\lambda \Gamma}{g^2} \quad (6.189)$$

Lorsque la pulsation de Rabi est non nulle, nous pouvons poser la condition généralisée suivante :

$$-\kappa_\lambda + \frac{4\Gamma(D_{01} + D_{02})g^2}{\omega_R^2 + 4\Gamma^2} > 0 \quad D_{01} + D_{02} > \frac{\kappa_\lambda (\omega_R^2 + 4\Gamma^2)}{4\Gamma g^2} \quad (6.190)$$

Nous obtenons une contradiction. La somme des inversions de populations augmenterait lorsque la pulsation de Rabi croît. Cela n'est pas conforme aux résultats dégagés lors des calculs menés selon la démarche de Scully et al. Nous choisissons de ne pas développer plus en avant les calculs effectués en adaptant le procédé de H. Haken. Nous ne comprenons pas l'origine de la présente contradiction. Il est possible que notre découpage de l'axe des temps en deux périodes ne soit pas valide. Néanmoins, il a produit un abaissement du seuil de l'effet laser dans la cavité en Ti :saphir lorsque la pulsation de Rabi du champ électrique de cohérence est différente de zéro. Nous n'avons pas fait une erreur de signe devant le facteur ω_R^2 .

Conclusion

Nous avons abouti à une contradiction entre les méthodes issues de Scully et al. et de H.Haken. Nous devons aussi préciser que le choix d'un temps initial $t_i = 0$ posé lors de la méthode de Scully et al. pourrait apparaître controversé, mais nous remarquons qu'elle a produit des résultats exploitables pour le calcul d'ordres de grandeur.

La théorie développée illustre une configuration à trois niveaux électroniques d'énergie. Elle a permis de mettre en exergue le facteur U :

$$U = \frac{\gamma_a^2 \omega_R}{4\Gamma \omega_0 A_{10}} \quad (6.191)$$

Nous supposons que le ratio avec la quantité r (ratio $\frac{r-1}{r+1}$) n'est pas trop petit; nous ne l'exprimons pas dans les formules pour U et nous admettons qu'un pompage ad hoc permet de produire une valeur convenable pour celui-ci. Nous commentons ce facteur en guise de conclusion de ce chapitre. Pour disposer d'un réel abaissement du seuil de l'effet laser, il serait nécessaire d'avoir un taux de décroissance du niveau a γ_a modéré. Ce taux est élevé au carré. Il faudrait imposer une forte pulsation de Rabi, soit en appliquant un champ électrique de grande amplitude, soit en exploitant une transition dipolaire électrique dite autorisée entre les deux sous-niveaux proches. Il faudrait aussi exploiter un matériau tel que la séparation en énergie entre de tels sous-niveaux proches soit la plus faible possible. Les démonstrations expérimentales réalisées afin de mettre en évidence l'effet laser sans inversions de populations impliquaient une transition dipolaire électrique autorisée entre les deux sous-niveaux de nature radiofréquence pouvant être issue d'une structure fine du spectre des énergies. Nous en comprenons mieux les raisons au vue du facteur U . Il reste à commenter le paramètre A_{10} , c'est-à-dire la fréquence de relaxation ou taux de décroissance des deux sous-niveaux vers le niveau fondamental atteint après une relaxation vibronique. En fait, c'est le temps très court de l'ordre d'une picoseconde du vidage des deux sous-niveaux proches vers le niveau fondamental qui est préjudiciable. Il faut trouver un matériau tel qu'il n'existe pas de relaxation vibronique entre les deux sous-niveaux proches et le niveau fondamental. Pour ce matériau, un effet laser sans inversions de populations deviendrait alors plausible. Nous apportons une légère modification à l'expression du facteur U . Nous avons les formules :

$$\Gamma = \frac{\gamma_a}{2} + \frac{A_{10}}{2} + \gamma_{collisions}$$

$$U = \frac{\gamma_a^2 \omega_R}{2\omega_0 A_{10}^2} \quad (6.192)$$

Enfin, nous remarquons que la constante de relaxation Γ_0 introduisant une décohérence peut être éventuellement très grande. Pour notre théorie et notre description, cette décohérence n'interviendrait pas dans l'expression du facteur U . Aussi, afin de trancher au moyen d'une expérience, il faudrait déterminer un matériau correspondant au cahier des charges suivant :

γ_a Taux de décroissance du niveau haut modéré

ω_R Pulsation de Rabi du champ de cohérence grande

ω_0 Séparation en énergie entre les deux sous-niveaux proches faible (peut être de nature radiofréquence)

A_{10} Vidage des deux sous-niveaux proches vers le niveau fondamental très lent

Nous pensons que le principal intérêt du concept d'effet laser sans inversion de populations serait d'avoir un effet laser à une autre longueur d'onde que 800 nm en favorisant l'emploi de cristaux différents du Ti :saphir. Indiquons que les autres matériaux actuellement utilisés pour les impulsions intenses sont les cristaux dopés ytterbium. D'autres cristaux pourraient être employés si notre concept était mis en application. En perspectives, nous rechercherons et nous essayerons de proposer des matériaux répondant au cahier des charges indiqué ci-dessus. Nous concluons, par le résultat très fort, que l'effet laser sans inversions de populations ne saurait être mis en évidence pour le Ti :saphir au stade intermédiaire de nos réflexions. La présent exposé a néanmoins pu mettre en exergue l'importance d'une meilleure connaissance de la spectroscopie du Ti :saphir dans le domaine infrarouge lointain. Ainsi, il faudra déterminer la fluence de saturation du Ti :saphir dans la bande de longueurs d'onde incluant 17 μm . De même, les influences de la température, de la largeur et de la forme spectrale de la fluorescence qui déterminent la quantité $d_{01} - d_{02}$ devront être étudiées afin de juger de la plausibilité d'un effet LWI pour un matériau candidat. L'importance du fonctionnement en régime non-linéaire, qui n'a pas été envisagé ici, devra aussi être examinée.

Glossaire pour le chapitre (6)

- A_{ij} Fréquences de relaxation en termes de populations
- c Célérité de la lumière
- e Charge de l'électron sans le signe
- E_0 Demi-amplitude du champ électrique du faisceau infrarouge de cohérence ou de pompage entre les deux sous-niveaux proches
- \mathcal{E}_0 Amplitude du champ électrique
- ρ_{ab} Élément de matrice de l'opérateur moment dipolaire électrique entre les états indicés par a et b
- \mathcal{P} Puissance de pompage
- w Densité de puissance du faisceau infrarouge de cohérence ou de pompage entre les deux sous-niveaux proches
- γ Cohérence entre les deux sous-niveaux proches pour une configuration à trois niveaux d'énergie (dans la section (6.1))
- γ_μ Cohérence entre les deux sous-niveaux d'un atome indicé par μ
- $\gamma_1, \gamma_a, \gamma_{ab}, \gamma_{12}$ Dans le formalisme de Scully et al. désignent des fréquences de relaxation
- γ_0 Partie stationnaire pour la cohérence entre les deux sous-niveaux proches pour une configuration à trois niveaux d'énergie

- Γ, Γ_0 Fréquences de relaxation (constantes dans les équations d'évolution de Bloch)
- δt Durée d'un pulse laser
- ϵ_0 Permittivité du vide
- κ_λ Facteur des pertes de la cavité laser
- ρ Opérateur matrice densité (sans unité)
- $\tilde{\rho}$ Opérateur matrice de populations (en m^{-3})
- σ_λ Conductivité électrique associée aux pertes de la cavité laser
- ω Pulsation du champ électrique dans la cavité laser à état solide pour le cas traité par la théorie de Scully et al.
- ω_λ Pulsation du mode du champ électrique dans la cavité laser non-chargée

Chapitre 7

Conclusion

Je présente dans cette conclusion les différents résultats obtenus à l'issue de mes travaux de thèse. J'expose ensuite quelques perspectives à mener. En particulier, j'évoque un concept qui pourrait faire l'objet d'une expérience. Cependant, je tiens à exposer une méthodologie systématique que je m'efforcerai de suivre scrupuleusement lors de mes travaux futurs. Je vais rendre explicite les prémisses de mes calculs menés aux chapitres (3) et (4).

7.1 Recommandations pour la suite des travaux

7.1.1 Une méthodologie systématique

Dans l'ouvrage [52], l'auteur de l'introduction Catherine Chevalley indique une méthode pour l'analyse des concepts maniée par Niels Bohr - bien que ce dernier n'en ait jamais écrit les prescriptions. Cette méthode comporte essentiellement trois types d'actes :

1) l'élucidation des hypothèses générales qui sont à la base d'une théorie, ou encore l'explication des prémisses de tous les raisonnements;

2) la détermination du domaine d'application d'un concept donné ou d'un principe général;

3) l'aggravation des difficultés pour tenter de parvenir à la pureté d'une contradiction, et de là à la simplicité et à l'harmonie.

«Tout progrès dans la science vient d'une insistance sur les difficultés. Tout progrès en physique vient, non pas des démonstrations, mais seulement de la simplicité des connexions établies entre différentes conceptions »[53]. J'explicite la totalité des prémisses des calculs des chapitres (3) et (4).

7.1.2 Les prémisses de calculs

Le premier groupe de prémisses a trait au module au carré de l'élément de matrice entre les états initial et final de l'Hamiltonien de perturbation du moment dipolaire électrique lorsque ces états comprennent une partie électronique et une autre partie liée aux déplacements des noyaux d'un système "moléculaire". Le principe de Franck-Condon permet de factoriser ce module au carré en cette partie électronique évaluée à l'ordre zéro (par rapport aux déplacements nucléaires) multipliée par une intégrale de recouvrement produisant la forme spectrale.

La partie électronique comporte des grandeurs comme $|\langle e| - eX|t\rangle|^2$. $-eX$ symbolise un opérateur moment dipolaire électrique pris entre les états e et t élaborés à partir des fonctions d'onde à un électron de l'électron $3d^1$. Cette partie est invariante pour la substitution entre les états e et t : cela signifierait que les constantes de moments dipolaires électriques résiduels sont identiques pour tous les processus radiatifs (j'envisage les processus d'émissions et d'absorption). Ces fonctions d'onde ainsi que l'opérateur moment dipolaire électrique ne sont pas fonction de la fréquence de la radiation. La dépendance en fréquence de la radiation du module au carré tel qu'évoqué au début de la présente sous-section proviendrait uniquement de celle de la forme spectrale. L'auteur à la référence [32] indique que la probabilité par unité de temps et par unité d'angle solide du photon émis spontanément ne comporte pas la notation ν de la fréquence de la radiation émise dans le facteur $|D_{ab}^0|^2$ autre symbole désignant les grandeurs $|\langle e| - eX|t\rangle|^2$. Aussi je réaffirme l'indépendance de ces dernières par rapport à la fréquence de la radiation. Cette indépendance est nécessaire pour l'expression de ma seconde innovation telle que posée au chapitre (3).

Au chapitre (3), j'ai pu considérer la situation pour les états initial et final de l'Hamiltonien H_0 : $|in\rangle = |\Phi_1\rangle \otimes |\Omega_0\rangle$ et $|fin\rangle = |\Phi_0\rangle \otimes |1 : \mathbf{k}\lambda\rangle$. La probabilité de transition par unité de temps et par unité d'angle solide du processus radiatif entre ces états initial et final est toujours fonction du module au carré $|\langle fin|H_{int}|in\rangle|^2$ (voir la formule en [54]). Pour calculer le temps d'émission spontanée, je somme les probabilités par unité de temps sur l'ensemble des valeurs de \mathbf{k} (module du vecteur d'onde) et sur les différentes directions (sommation sur les angles solides). Je pense que ce procédé de sommation - somme des probabilités et non la somme des amplitudes de probabilités - est possible parce que j'envisage un seul vecteur d'onde à la fois dans la formulation de la probabilité par unité de temps et par angle solide et parce que les émissions spontanées sont indépendantes. Le point de ce paragraphe est primordial et je considère que je clarifie le travail de l'au-

teur Reuse FA. La présente prémisse est employée pour les calculs des temps d'émission spontanée lorsqu'elle est gouvernée par un moment dipolaire magnétique ou électrique.

Au chapitre (4), je produis une formule de l'indice de réfraction total du Ti :saphir en fonction de la concentration de dopant. J'ai supposé le traitement d'un indice linéaire et je rappelle que l'influence de cette concentration se manifeste sur la troisième décimale des valeurs d'un tel indice. Il serait envisageable d'inclure une autre influence : celle d'un indice non-linéaire sur cette même troisième décimale. Ces non-linéarités n'ont pas été déterminées dans le présent exposé, mais elles seront nécessairement traitées dans des travaux en perspectives. Je résume les résultats que j'ai obtenus au cours de mon travail.

7.2 Des résultats

J'ai évalué le temps d'émission spontanée d'un niveau excité e_g lorsque la transition radiative est de nature dipolaire magnétique sans déplacement des noyaux :

$$\boxed{\frac{1}{\tau} = \frac{e^2}{12\pi m^2 \epsilon_0 c^2 \hbar} \sum_{\{v''/E_{v''} < E_v\}} R_{v''}^v \left(\frac{E_v - E_{v''}}{\hbar c} \right)^3} \quad (7.1)$$

τ note le temps d'émission spontanée. $R_{v''}^v$ est la somme du carré des éléments de matrice de l'opérateur moment cinétique orbital total. E_v est l'énergie du niveau excité, $E_{v''}$ l'énergie d'un niveau inférieur au précédent, \hbar la constante de Planck réduite, c la célérité de la lumière, m la masse de l'électron, e la valeur absolue de la charge de l'électron, ϵ_0 la permittivité du vide.

J'ai évalué les valeurs des forces de dipôles. La constante C de moment dipolaire électrique résiduel a été calculée à partir de la mesure d'un spectre en absorption. La force de dipôles perpendiculaire à l'axe c du cristal de Ti :saphir a ensuite été estimée à partir du temps d'émission spontanée du niveau excité e_g . J'ai établi le résultat majeur suivant :

$$\boxed{\frac{1}{\tau} = n \cdot \left\{ \frac{E_l}{E} \right\}^2 \cdot e^2 C^2 X \cdot \left[\frac{16\pi^3}{3\epsilon_0 c^3 \hbar} \right] \cdot I(S, \omega_l, T < T_0)} \quad (7.2)$$

τ note le temps d'émission spontanée du niveau excité e_g . E indique le champ électrique incident et E_l note le champ électrique local. C est l'une des constantes de moment dipolaire électrique résiduel. X est un facteur qui décrit l'influence de la matrice cristalline diélectrique sur l'ion impureté. n est l'indice de réfraction moyen du Ti :saphir. h la

constante de Planck. Enfin I est une somme introduite par mes soins et dépendant des deux paramètres de Huang-Rhys S et ω_l (ce dernier paramètre indique l'énergie du phonon effectif) et elle est calculée lorsque la température est inférieure à une température de référence T_0 . J'ai pu calculer analytiquement les bons ordres de grandeur des sections efficaces d'émission stimulée à température ambiante pour les deux types de polarisation. J'ai modélisé la variation avec la température de telles sections efficaces ainsi que la forme spectrale des intensités de fluorescence. J'ai pu prouver que les constantes de moments dipolaires électriques résiduels sont identiques pour tous les processus radiatifs (émission ou absorption). Mon approche s'est affranchie d'un quelconque modèle de champ cristallin. Mais je n'ai pas su prédire les bonnes valeurs pour les sections efficaces d'absorption. La prise en compte de l'effet Jahn-Teller sera nécessaire pour autoriser une telle prédiction.

J'ai produit une formule pour l'indice de réfraction du Ti :saphir en fonction de la concentration de dopant. Cette formule est basée sur une modélisation de la polarisabilité isotropique de l'ion titane dans sa matrice de saphir. C'est le début d'une prise en compte de la concentration de dopant pour les propriétés spectroscopiques. Je donne ci-dessous l'expression de cette polarisabilité :

$$\zeta = -\frac{i}{\hbar\epsilon_0} \left(\frac{|p_{ad}|^2 N_{ad}}{\gamma_{ad} + i(\omega_{ad} - \nu)} + \frac{|p_{bc}|^2 N_{bc}}{\gamma_{bc} + i(\omega_{bc} - \nu)} \right) \quad (7.3)$$

N_{ad} et N_{bc} sont des constantes. p_{ad} et p_{bc} sont des éléments de matrice de l'opérateur moment dipolaire électrique résiduel. ω_{ad} et ω_{bc} notent les pulsations de transitions atomiques entre les kets $|a\rangle/|d\rangle$ et les kets $|b\rangle/|c\rangle$. Les grandeurs γ_{ad} et γ_{bc} sont les fréquences de relaxation des cohérences. ν est la pulsation du champ électrique de lumière.

De même, je sais que l'interaction entre les ions impuretés existe aux fortes concentrations de dopant et ces dernières pourraient alors apparaître comme paramètres dans les formules décrivant la spectroscopie quantitative. Ainsi, les valeurs des paramètres de la théorie de Huang-Rhys (qui constitue une approche analytique simple pour prédire les formes spectrales) varient avec la concentration de dopant quand cette dernière est importante. J'ai en outre établi une équation intégro-différentielle en la variable, l'amplitude du vecteur potentiel. Sa résolution, à achever en perspectives, pourrait fournir une relation de dispersion. J'ai trouvé un Lagrangien décrivant mon système totalement quantifié (description selon des photons, des phonons et des électrons).

Enfin, j'ai reproduit la condition de seuil de l'effet laser pour un système à deux niveaux électroniques. J'ai montré que cette condition était consistante quelque soit la nature du laser : à état solide ou avec injection de matière dans la cavité. La condition s'évalue :

$$D_0 > \frac{\kappa\gamma}{g^2} \quad (7.4)$$

D_0 est reliée à la puissance de pompage, κ est le facteur des pertes de la cavité laser, γ est le taux de déphase des moments dipolaires électriques et g est une constante de couplage proportionnelle à la valeur du moment dipolaire électrique.

J'ai étudié une configuration à trois niveaux électroniques d'énergie. J'ai pu montrer que l'irradiation du matériau actif constitué d'un cristal de saphir dopé au titane par un faisceau de cohérence accordé à la la longueur d'onde correspondant à l'énergie de séparation entre les deux proches sous-niveaux permettrait d'abaisser le seuil de pompage. Cet abaissement est cependant très faible, aussi je doute très fortement que l'on puisse mettre en évidence un effet laser sans inversion de populations pour le matériau vibronique Ti :saphir. J'ai dégagé un facteur U utile pour la présente discussion :

$$U = \frac{\gamma_a^2 \omega_R}{2\omega_0 A_{10}^2} \quad (7.5)$$

ω_0 est la pulsation de transition atomique entre les deux sous-niveaux proches. g_0 est la constante de couplage entre ces derniers. E_0 est à associer à l'amplitude du champ électrique d'injection de cohérence irradiant le barreau de Ti :saphir. Sa pulsation est égale à ω_0 . J'ai l'égalité $\omega_R = g_0 \times 2E_0$. Le taux de déphasage des moments dipolaires électriques entre les deux sous-niveaux proches est défini par Γ_0 . J'ai introduit l'unique constante de Bloch T_r pour la relaxation des inversions de populations (cela est bien un parti pris). J'ai produit un cahier des charges pour les matériaux actifs pouvant prétendre à mettre en évidence un effet laser sans inversion de populations. En perspectives, il faudra nommer des matériaux respectant un tel cahier.

7.3 Des perspectives

7.3.1 Celles ne concernant pas le concept LWI

Je reprendrai mes travaux afin de dépasser le modèle très grossier des charges ponctuelles quant à la description du champ cristallin du Ti :saphir. J'essaierai d'exploiter l'ef-

fet Jahn-Teller afin de modéliser correctement les sections efficaces d'absorption stimulée. J'affinerai mes modélisations théoriques des sections efficaces d'émission stimulée avec pour objectif de restituer un maximum autour de 800 nm et non à 866 nm comme calculé dans le présent exposé. Une réelle confrontation de ma formule de l'indice de réfraction total du saphir dopé au titane avec des données expérimentales devra être menée. Néanmoins, la difficulté majeure pour effectuer une telle confrontation demeure la connaissance trop imprécise des concentrations de dopant mesurées dans les différents échantillons (la concentration de dopant dans le creuset est connue avec précision, cependant celles adhérant et diffusant dans le cristal final sont mal aisées à déterminer). En outre, un travail théorique de description de l'interaction entre les impuretés sera à réaliser. Il est aussi intéressant d'examiner les diagrammes d'énergie des matériaux ions terres-rares dans des matrices diélectriques cristallines afin de repérer ceux disposant de configurations à trois niveaux électroniques. Parmi ceux-ci, j'en rechercherai respectant le cahier des charges fourni au chapitre (6). Le dispositif expérimental proposé dans ce même chapitre devra être adapté à ces nouveaux matériaux recherchés.

7.3.2 D'un concept, proposons une expérience

J'expose les précédents théoriques et expérimentaux qui fondent l'effet laser sans inversion de populations. Dans son ouvrage [55], Scully et al. ont présenté théoriquement plusieurs phénomènes exploitant des systèmes à trois niveaux tels que le piégeage de populations, la transparence induite électromagnétiquement et l'effet laser sans inversion de populations. De même plusieurs auteurs ont théorisé de telles approches ([56, 57, 58, 59]). Dans le chapitre (6), je me suis attaché à justifier théoriquement l'abaissement du seuil de l'effet laser, lorsqu'un champ de cohérence est établi entre deux sous-niveaux proches du système à trois niveaux. Cet abaissement aurait été la signature d'un effet laser sans inversion de populations, mais j'ai montré que la capacité d'un tel effet est inatteignable pour le Ti :saphir.

L'interprétation théorique de LWI est que les termes d'absorption sont contrecarrés par des termes dûs à des cohérences entre les deux sous-niveaux proches. Cela peut être envisagé grâce à une approche semi-classique du système à trois niveaux. Lorsque j'ai le phénomène de LWI, pour avoir un même effet laser, j'ai besoin comparativement de moins de puissance de pompage. Cela présenterait un réel avantage parce que plus je pompe, plus je rencontre des problèmes de thermique et autres dans les dispositifs lasers. Aussi, être capable de LWI serait un véritable progrès dans les dispositifs à état solide.

La bibliographie compte des exemples de démonstrations d'effet d'oscillation ou d'effet laser sans inversion de populations. Mais il faut noter que de telles démonstrations ont été réalisées pour des lasers à gaz ou moléculaires tels que les sous-niveaux étaient produits grâce à une structure fine ou hyperfine du spectre. Il en résultait que le champ dit de cohérence était de nature radio-fréquence. La présente démonstration, ici investiguée, était tout autre. Le système à trois niveaux était envisagé pour un matériau laser à état solide qui obéissait à un champ cristallin levant la dégénérescence d'un ion impurété. C'était donc un abaissement d'une haute symétrie par le champ cristallin qui produisait les sous-niveaux nécessaires. Aussi, la séparation entre ces sous-niveaux était comptée en longueur d'onde infrarouge moyen ou lointain. Il fallait bien prendre en compte le couplage électron-phonon fort dans ces matériaux à état solide qui affecte le spectre. Théoriquement, on a réduit ce spectre à une seule fréquence effective de phonons. J'ai bien abouti à une impasse quant à cette démonstration pour le matériau Ti :saphir, matériau vibronique incompatible avec l'effet LWI.

Nous concluons sur la méconnaissance très probable de la transparence du Ti :saphir aux longueurs d'onde de nature radiofréquence. De même, la spectroscopie de ce matériau de choix est mal connue dans la bande incluant $17\ \mu\text{m}$. Cette spectroscopie du Ti :saphir mettant en œuvre la symétrie trigonale du champ cristallin est à déterminer de nos jours grâce aux sources femtosecondes dans les bandes infrarouge.

7.3.3 Une perspective majeure motivant le présent travail de thèse

La perspective majeure de ma thèse serait la possibilité réelle de réalisation de lasers de très hautes puissances crête avec d'autres cristaux que le Ti :saphir ou l'ytterbium, ce qui impliquerait un changement de la longueur d'onde. L'application du concept LWI à cette terre-rare devra être absolument menée, eu égard à l'importance quasi-industrielle de ce matériau. Il faudra réexaminer les cristaux candidats pour la lumière extrême tout en sachant que l'impact de la thermique peut alors être amenuisé. L'important est de bien vérifier si ces candidats respectent le cahier des charges fourni en conclusion du chapitre (6).

Annexe A

Résolution du système laser à trois niveaux

> restart;

Résolution des équations pour la première période de temps (**sous section (6.3.1)**). Nous avons travaillé sur la variable η parce que la variable γ est protégée (elle correspond à la constante d'Euler).

> restart;

$$\begin{aligned} > \text{solf} := \text{diff}(\eta(t), t) = (I\omega_0 - \Gamma_0) \cdot \eta(t) - I(d_2(t) - d_1(t)) \cdot g_0 \cdot E_0 \cdot \exp(I\omega_0 \cdot t), \text{diff}(d_1(t), t) \\ &= -I \cdot \text{conjugate}(\eta(t)) \cdot g_0 \cdot E_0 \cdot \exp(I\omega_0 \cdot t) + I\eta(t) \cdot g_0 \cdot E_0 \cdot \exp(-I\omega_0 \cdot t) + \frac{d_{01} - d_1(t)}{T_r}, \\ \text{diff}(d_2(t), t) &= -I\eta(t) \cdot g_0 \cdot E_0 \cdot \exp(-I\omega_0 \cdot t) + I \cdot \text{conjugate}(\eta(t)) \cdot g_0 \cdot E_0 \cdot \exp(I\omega_0 \cdot t) \\ &+ \frac{d_{02} - d_2(t)}{T_r}; \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{solf} := \frac{d}{dt} \eta(t) &= (I\omega_0 - \Gamma_0) \eta(t) - I(d_2(t) - d_1(t)) g_0 E_0 e^{I\omega_0 t}, \frac{d}{dt} d_1(t) = -I \\ \overline{\eta(t)} g_0 E_0 e^{I\omega_0 t} &+ I\eta(t) g_0 E_0 e^{-I\omega_0 t} + \frac{d_{01} - d_1(t)}{T_r}, \frac{d}{dt} d_2(t) = -I\eta(t) g_0 E_0 e^{-I\omega_0 t} + I \\ \overline{\eta(t)} g_0 E_0 e^{I\omega_0 t} &+ \frac{d_{02} - d_2(t)}{T_r} \end{aligned} \quad (1)$$

> soll := dsolve([solf]);

$$\begin{aligned} \text{soll} := \left[\left[\overline{\eta(t)} = \frac{1}{2} \frac{1}{E_0^2 T_r^2 g_0^2 (e^{I\omega_0 t})^2} \left(-2\eta(t) T_r^2 \omega_0^2 + 2 \left(\frac{d}{dt} \eta(t) \right) T_r^2 \Gamma_0 \right. \right. \right. \\ \left. \left. - 2I\eta(t) \omega_0 T_r - e^{-\frac{I(T_r \omega_0 + 1)t}{T_r}} e^{-\frac{t}{T_r}} \left(\frac{d^2}{dt^2} \eta(t) \right) e^{I\omega_0 t} T_r^2 \right. \right. \\ \left. \left. - e^{-\frac{t(1T_r \omega_0 - 1)}{T_r}} e^{-\frac{t}{T_r}} \left(\frac{d}{dt} \eta(t) \right) e^{I\omega_0 t} T_r + 2 \left(\frac{d}{dt} \eta(t) \right) T_r + 2 \left(\frac{d^2}{dt^2} \eta(t) \right) T_r^2 \right. \right. \\ \left. \left. + e^{-\frac{I(T_r \omega_0 + 1)t}{T_r}} e^{-\frac{t}{T_r}} e^{I\omega_0 t} \eta(t) - e^{-\frac{t(1T_r \omega_0 - 1)}{T_r}} e^{-\frac{t}{T_r}} e^{I\omega_0 t} \eta(t) - 2IE_0 e^{I\omega_0 t} d_{01} g_0 T_r \right) \right] \end{aligned} \quad (2)$$

$$\begin{aligned}
& + 2 I e^{-\frac{t(1T_r \omega_0 - 1)}{T_r}} e^{-\frac{t}{T_r}} \left(\frac{d}{dt} \eta(t) \right) e^{I \omega_0 t} T_r^2 \omega_0 \\
& + I e^{-\frac{t(1T_r \omega_0 - 1)}{T_r}} e^{-\frac{t}{T_r}} e^{I \omega_0 t} \eta(t) T_r^2 \Gamma_0 \omega_0 + 3 I e^{-\frac{t(1T_r \omega_0 - 1)}{T_r}} e^{-\frac{t}{T_r}} e^{I \omega_0 t} \eta(t) T_r \omega_0 \\
& + I E_0 e^{\frac{t}{T_r}} e^{-\frac{t}{T_r}} e^{I \omega_0 t} T_r d_{01} g_0 + 2 T_r \Gamma_0 \eta(t) + 2 e^{-\frac{t(1T_r \omega_0 - 1)}{T_r}} e^{-\frac{t}{T_r}} e^{I \omega_0 t} \eta(t) T_r^2 \omega_0^2 \\
& + 2 E_0^2 e^{I \omega_0 t} e^{-I \omega_0 t} \eta(t) T_r^2 g_0^2 - e^{-\frac{t(1T_r \omega_0 - 1)}{T_r}} e^{-\frac{t}{T_r}} \left(\frac{d}{dt} \eta(t) \right) e^{I \omega_0 t} T_r^2 \Gamma_0 \\
& - e^{-\frac{t(1T_r \omega_0 - 1)}{T_r}} e^{-\frac{t}{T_r}} e^{I \omega_0 t} \eta(t) T_r \Gamma_0 - 2 I \eta(t) T_r^2 \Gamma_0 \omega_0 \\
& - e^{-\frac{I(T_r \omega_0 + 1)t}{T_r}} e^{-\frac{t}{T_r}} e^{I \omega_0 t} \eta(t) T_r^2 \omega_0^2 - 4 I \left(\frac{d}{dt} \eta(t) \right) T_r^2 \omega_0 \\
& + I E_0 e^{\frac{t}{T_r}} e^{-\frac{t}{T_r}} e^{I \omega_0 t} T_r d_{02} g_0 - 2 I e^{-\frac{I(T_r \omega_0 + 1)t}{T_r}} e^{-\frac{t}{T_r}} e^{I \omega_0 t} \eta(t) T_r \omega_0 \Bigg\}, \left\{ d_2(t) \right. \\
& = \left(\frac{1}{2} \frac{1}{T_r E_0 g_0} \left(\left(I e^{-\frac{t(1T_r \omega_0 - 1)}{T_r}} T_r \Gamma_0 - e^{-\frac{I(T_r \omega_0 + 1)t}{T_r}} T_r \omega_0 + 2 e^{-\frac{t(1T_r \omega_0 - 1)}{T_r}} T_r \omega_0 \right. \right. \right.
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& -I e^{-\frac{I(T_r \omega_0 + 1)t}{T_r}} + I e^{-\frac{I(T_r \omega_0 - 1)t}{T_r}} \Big) \eta(t) \Big) + \frac{\frac{1}{2} I e^{-\frac{I(T_r \omega_0 + 1)t}{T_r}}}{E_0 g_0} \left(\frac{d}{dt} \eta(t) \right) \\
& + \frac{1}{2} \left[\frac{d_{01} T_r e^{\frac{t}{T_r}} + d_{02} T_r e^{-\frac{t}{T_r}}}{T_r} + \text{CI} \right] e^{-\frac{t}{T_r}} \Bigg\} \left\{ d_1(t) = \right. \\
& \left. - \frac{I \left(I g_0 E_0 e^{I \omega_0 t} d_2(t) - I \eta(t) \omega_0 + \eta(t) \Gamma_0 + \frac{d}{dt} \eta(t) \right)}{E_0 e^{I \omega_0 t} g_0} \right\}
\end{aligned}$$

> simplify(sol1);

$$\begin{aligned}
& \left\{ \overline{\eta(t)} = \frac{1}{2} \frac{1}{T_r E_0^2 g_0^2} \left(\left(\left(\frac{d^2}{dt^2} \eta(t) \right) T_r + (1 + (-2 I \omega_0 + \Gamma_0) T_r) \left(\frac{d}{dt} \eta(t) \right) - \eta(t) \left(\right. \right. \right. \right. \quad (3) \\
& \left. \left. \left. -2 E_0^2 g_0^2 + I \Gamma_0 \omega_0 + \omega_0^2 \right) T_r + I \omega_0 - \Gamma_0 \right) e^{-2 I \omega_0 t} - I E_0 (d_{01} - d_{02}) e^{-I \omega_0 t} g_0 \right) \Big\}, \\
& \left\{ d_2(t) \right. \\
& = \frac{1}{2} \frac{1}{g_0 E_0} \left(2 E_0 e^{-\frac{t}{T_r}} \text{CI} g_0 + \left(I \left(\frac{d}{dt} \eta(t) \right) + (I \Gamma_0 + \omega_0) \eta(t) \right) e^{-I \omega_0 t} \right. \\
& \left. \left. + g_0 E_0 (d_{01} + d_{02}) \right) \right\}, \left\{ d_1(t) \right. \\
& = \left. \frac{\left(-I \left(\frac{d}{dt} \eta(t) \right) + (-I \Gamma_0 - \omega_0) \eta(t) \right) e^{-I \omega_0 t} + g_0 E_0 d_2(t)}{E_0 g_0} \right\}
\end{aligned}$$

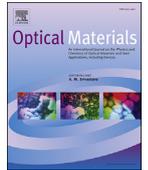
Annexe B

Une publication pour validation



Contents lists available at ScienceDirect

Optical Materials

journal homepage: www.elsevier.com/locate/optmat

Ti:sapphire – A theoretical assessment for its spectroscopy



A. Da Silva*, D. Boschetto, J.M. Rax, G. Chériaux

Laboratoire d'Optique Appliquée ENSTA-ParisTech, Ecole Polytechnique, CNRS, 828 boulevard des Maréchaux, 91762 Palaiseau, France

ARTICLE INFO

Article history:

Received 21 September 2016

Received in revised form

21 November 2016

Accepted 21 November 2016

Available online 2 December 2016

Keywords:

Ti:sapphire

Quantum physics

Quantitative spectroscopy

ABSTRACT

This article tries to theoretically compute the stimulated emission cross-sections when we know the oscillator strength of a broad material class (dielectric crystals hosting metal-transition impurity atoms). We apply the present approach to Ti:sapphire and check it by computing some emission cross-section curves for both π and σ polarizations. We also set a relationship between oscillator strength and radiative lifetime. Such an approach will allow future parametric studies for Ti:sapphire spectroscopic properties.

© 2016 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

Progress in high power solid state lasers such as those of the PetaWatt class require good knowledge and understanding of the spectroscopic properties of very large Ti:sapphire single crystals. We need to know these photo-physical properties for samples which may have large dimensions: tens of centimeters. Here we present a method for estimating an order of magnitude of the stimulated emission cross-sections of Ti:sapphire, which is an essential parameter to predict laser behavior in computer simulations.

This material has been extensively studied, both from theoretical and experimental points of view ([1–3]). Ti^{3+} doped compounds including Ti:sapphire have been successfully treated either from molecular orbital theory or ligand field theory. Within these two contexts, we have a good knowledge of the 3d radial expectation values of powers $\langle r^3 \rangle$, but we want to emphasize that we did not need to use them in this work. P. Albers [3] made calculations assuming the relaxation from the Laporte's rule for that material due to the absence of a center of symmetry. This absence is then responsible for residual dipole matrix elements. A real vibronic contribution is also involved. The relaxation from the Laporte's rule indicates a lowering of symmetry from O_h to C_{3v} . If we assumed an O_h symmetry, then the odd components of the crystal field would identically vanish and the well known d-p mixing would not occur. So we stress that the true point symmetry in Ti:sapphire is C_{3v} (or

C_3). A d-p mixing (all orbitals belong to the titanium ion) is then at work and it causes these dipole matrix elements. Moreover we know that in an opposite parity configuration mixing the wavefunction radial part cannot be treated as 3d radial expectation values. We claim that we do not use these radial part values neither the very crude point charge model. We have released ourselves from the latter model given in Ref. [4] and we have used no formula for the moment constants. We do indeed not use at all any formulation of the crystal field and we merely refer to the one-electron electric dipole moment table without formula for these moments. The distribution of moments in Table 1 only obeys the qualitative geometry of the corundum. The evocation of the mixture d-p is exploited to produce the residual electric moments. Other points of view or theories could be evoked to explain the appearance of such residual electric moments.

We follow the logical way of measuring the light absorption which can give us information about the values of the dipole strengths. A simple Huang-Rhys model [5,6] is used to take into account the lattice influence on the titanium ion. This model implements the contribution from overlap integral and gives us a simple and analytical spectral shape for spontaneous emission spectra.

We will present all the assumptions of our model and hope to relax some in future papers. We aim at understanding Ti:sapphire spectroscopy to better design lasers. As key novelties, we bring some new computed values for the stimulated emission cross-sections of Ti:sapphire. We also show a very important relationship between the oscillator strengths and the radiative lifetimes. This relationship is indeed a novelty because it takes into account

* Corresponding author.

E-mail address: antonio.da-silva@ensta-paristech.fr (A. Da Silva).

Table 1
Electric dipole moments for Ti:sapphire (ref [4]).

	M_x	M_y	M_z
$e_x t_x$	A	$-2\sqrt{2}D$	C
$e_y t_y$	$-A$	$2\sqrt{2}D$	C
$e_x t_y$	$-2\sqrt{2}D$	$-A$	$-3D$
$e_y t_x$	$-2\sqrt{2}D$	$-A$	$3D$
$e_x t_z$	B	$-D$	0
$e_y t_z$	D	B	0

the level degeneracy of our material. We thus made the fundamental assumption of a single set of Huang-Rhys parameters for all possible emission transitions. The authors claim its novelty and confirm that they have not seen it in other scientific articles. The very useful method which we used is termed in French: "la méthode de la résolvente". This method can be consulted in Ref. [7].

2. Main assumptions

2.1. The Born-Oppenheimer scheme

According to the arguments given by I.B. Bersuker [8] and V.Z. Polinger [9], the separation between the electronic and nuclear variables of our system can be rigorously set when the following condition is fulfilled:

$$\hbar\omega_\Gamma(m) \ll |E_k - E_m| \text{ for all } k \neq m \text{ and any } \Gamma \quad (1)$$

Γ may be an irreducible representation of the symmetry site, E_k or E_m denote the energies of the states k and m . $\omega_\Gamma(m)$ stands for the vibration quantum relative to the active mode of the Γ representation. When this condition is checked, it allows to use the Born-Oppenheimer scheme where we first solve the electronic problem and use its solutions to study the vibrational motions of the nuclei. For our system, the only true assumption is to regard the radiative transitions among these electronic multiplets as adiabatic. Such an assumption does remain an approximation. This analysis follows the line of argumentation given by Yu.E. Perlin et al. [10].

2.2. The spectral shape on radiative transitions

Another fundamental assumption involves the superposition of simple bands with different Stokes shifts and intensities (depending on the dipole strengths). This is consistent with what is said in Ref. [10]. We are interested in spontaneous and stimulated emissions. We observe that the spectral shape of these emissions is Gaussian at high temperatures and does not show a double-band internal structure as the one seen for absorption spectra. So our first innovation is to only regard one set of Huang-Rhys parameters (one S factor and the single phonon frequency ω_l) although we should normally use different sets for each electric dipole moment. This will allow us to factor the spectral shape for the spontaneous emission process. We do not use the calculated spectral shape of a parity-forbidden transition because we do not observe a valley (zero value) at the wavelength corresponding to the most probable Stokes shift (given by the Franck-Condon principle). For our theory, the spectral shape is due to residual but allowed dipoles. This is described by a simple Huang-Rhys model.

2.3. The complete lifting of degeneracy

According to crystal field theory, the electronic levels of the titanium ion undergo a progressive lifting of degeneracy when we regard lower and lower symmetries. We have the scheme:

$$O_h \supset C_{3v} \supset C_3 \quad (2)$$

The highest symmetry is cubic or octahedral O_h (it is not the true point symmetry in Ti-sapphire; we regard it as an approximation). For this symmetry, we have a doublet e_g and a triplet t_{2g} . As stated by McClure [4], the absence of a center of symmetry in corundum means that the $d \rightarrow d$ transition can occur because odd-power terms may mix the even d functions with odd functions. The latter are titanium $4p$ orbitals. This absence then indicates that we are considering the lowering of symmetries from $O_h \rightarrow C_{3v}$. When symmetry is further lowered, the symmetry group C_3 , which is a cyclic group [4], is gained. The latter is a commutative group. As we know that all irreducible representations associated with a commutative symmetry group have dimension one (they are not degenerate), we can conclude that all sites in such a crystal field (C_3 symmetry) are non degenerate. We are here concerned exclusively with one electron transitions of the type $e \rightarrow t$. The notations e or t refer back to the electronic states e_g and t_{2g} before the splitting of the degenerate states. For the symmetry C_{3v} , the dipole matrix elements are expressed thanks to three moment constants A, B and C. When we further lower the symmetry, we have to introduce another constant D. D is lower than A, B and C and the former will be neglected. We want to stress that the notations e and t for the states were defined by C.J. Ballhausen [11]. The dipole matrix elements are expressed between states (e_x, e_y) and (t_x, t_y, t_z) . As a result we are allowed to define radiative lifetimes of the excited energy level e by using the moment Table 1. (e_x, e_y) and (t_x, t_y, t_z) are not states of the symmetry O_h . They are states associated with energy levels of the symmetry C_{3v} .

2.4. A dilute doping concentration

Our material is $Ti:Al_2O_3$. The samples may have typical Ti concentrations of about $3.3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ as stated in Ref. [1]. Experimental spectroscopic values may have been obtained with such concentrations.

We know that the electron-phonon coupling factors (as provided for example by a simple Huang-Rhys model) may vary with doping concentrations [12]. So our model may be inaccurate if doping concentrations vary over a wide range or have large spatial variations.

Furthermore, we assume that the doping concentrations are small (they may be smaller than $3.3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) so that we may neglect the interaction between ion impurities. The spectroscopic properties are then independent of these concentrations. In the formulas for oscillator strengths or stimulated emission cross-sections, there is no impurity concentration factor. We recognize that a weak concentration of Ti is not the best for laser applications for which self-quenching may play a role. We are aware of these serious limitations of our model. Further work will include dopant concentration, which may be done by varying the Huang-Rhys parameters accordingly.

3. Theory and experimental test

3.1. A process chain for the computation of quantitative spectroscopic properties

The true site of Ti ion in corundum is trigonal. There is no triple degeneracy for Ti:sapphire. Nevertheless we can track back the eigenstates to those found for the octahedral symmetry.

The usual and the easiest way to measure the dipole strengths is conducting a light absorption experiment. The latter will measure the oscillator strength and will finally give us dipole strengths.

Nevertheless, the measured quantities refer to radiative absorption processes. We then made the implicit assumption that the dipole strengths are identical for all radiative processes (emission or absorption). Our approach will check such an assumption. An important relationship between the oscillator strengths and the radiative lifetimes is studied.

P.Albers et al. [2] measured the quenching of the radiative lifetime for Ti:sapphire over a temperature range. Their lifetime modeling gave the Huang-Rhys parameters of $S = 11.25$ and one phonon quantum of $\hbar\omega_l = 392 \text{ cm}^{-1}$.

We use the following process chain: experimental measurement of stimulated absorption \rightarrow measurement of oscillator strength \rightarrow computation of dipole strength $C^2 \rightarrow$ the formula for the spontaneous emission time below a reference temperature, the Huang-Rhys parameters and the experimental value of this time below such a temperature \rightarrow the computation of a X factor (see below part 3.2.2. Equation (7) for the definition of X).

The latter, when the moment constant C is known, gives the value of the expression $2A^2 + B^2$. We neglected D. With the use of J.M. Eggleston's Equation (14) for the stimulated emission cross-sections and the modeling of the spontaneous emission intensities, we may compute these emission cross-sections. We give a scheme for this process chain in Fig. 1.

3.2. Electric dipole moment

3.2.1. The use of the measured oscillator strength

As done in Ref. [13], we formulate the oscillator strength:

$$f = \frac{4\pi m}{h} \int |M|^2 \nu F(\nu) d\nu \quad (3)$$

when the electric dipole moment is constant, $\int \nu F(\nu) d\nu = \nu_{1or2}$. It means that the oscillator strength is independent of temperature.

Both absorption spectra (π and σ polarizations) have a double-peaked nature with two maxima at the wavelengths: $\lambda_1 = 485 \text{ nm}$ and $\lambda_2 = 550 \text{ nm}$. For π polarization, it remains two dipole moments responsible for absorption processes. Taking into account the level degeneracy of t and e and the contribution from the host sapphire, we may write:

$$f_{||} = \frac{1}{n} \frac{(n^2 + 2)^2}{9} \frac{4\pi m}{3h} C^2 (\nu_1 + \nu_2) \quad (4)$$

S.K. Mohapatra et al. [14] measured $f_{||} = 2.5 \cdot 10^{-4}$. We found the numerical value for the moment constant $C = 4.755 \cdot 10^{-12} \text{ m}$ or $C = 0.228 \text{ D}$.

A priori, we do not know the relative magnitude between A and B. Moreover, this is an impossible task to combine two frequencies with three dipole moments (e_x, t_y), (e_y, t_x) and (e_y, t_z). One could use a centroid frequency and a measurement of the oscillator strength

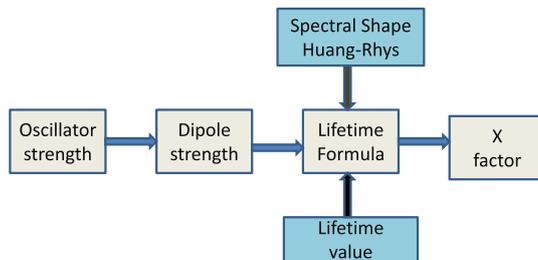


Fig. 1. Our theoretical approach.

perpendicular to c in order to remove this difficulty, but it would then introduce an inaccuracy for the wanted expression $2A^2 + B^2$. We choose an alternative procedure to compute the latter expression, even if it could be argued that such a procedure may not be more accurate than that using the centroid value. In conclusion, we will give explanations and justifications for our choice.

3.2.2. The alternative procedure

The formula of total transition probability per time unit for a single atom in vacuum taking into account level degeneracy may be found in Ref. [7]. We are studying spontaneous emission from e level:

$$w = \sum_{[\nu''/E_{\nu''} < E_e]} R_{\nu''}^e \frac{16\pi^3}{3\epsilon_0 c^3 h} (\nu - \nu'')^3 \quad (5)$$

where $R_{\nu''}^e$ is defined as follows:

$$R_{\nu''}^e = e^2 (2A^2 + B^2 + C^2 + 26D^2) = e^2 C^2 X \quad (6)$$

We get the definition for the factor X:

$$X = \frac{1}{C^2} (2A^2 + B^2 + C^2 + 26D^2) \quad (7)$$

Taking into account the host material effect for the refractive index $n = 1.768$ [15], the local field correction [16], the Franck-Condon parameter $\{F(\nu'') \cdot \Delta\nu\}$ (the contribution from overlap integral [5,15,17]) and assuming that dipole strengths are independent of frequency, we obtain:

$$w = n \frac{(n^2 + 2)^2}{9} R_{\nu''}^e \left[\frac{16\pi^3}{3\epsilon_0 c^3 h} \right] \sum_{[\nu''/E_{\nu''} < E_e]} (F(\nu'') \cdot \Delta\nu) (\nu - \nu'')^3 \quad (8)$$

We now calculate the sum:

$$W_p = \sum_{[\nu''/E_{\nu''} < E_e]} (F(\nu'') \cdot \Delta\nu) (\nu - \nu'')^3 \quad (9)$$

The introduction of this sum is a second innovation of our approach. In Ref. [2], we see one zero-phonon line at 617.7 nm which corresponds to energy $E = 2.01 \text{ eV}$. The authors of [10] noticed that the zero-phonon lines have a coincident frequency. We then regard this single zero-phonon line at 2.01 eV for our system.

Also in Ref. [2], a reasonable value for the single effective phonon quantum is given: $\hbar\omega_l = 392 \text{ cm}^{-1}$. The authors gave the Huang-Rhys parameter $S = 11.25$ for electron-phonon coupling. Below 200 K, the spontaneous emission time from the e level is $\tau = 3.85 \mu\text{s}$. We know that for this temperature range we can neglect the non radiative processes and the use of Equation (8) is fair. We compute the sum W_p :

$$W_p = \sum_{p=0}^{\frac{E - p \cdot \hbar\omega_l}{h}} \left(\frac{E - p \cdot \hbar\omega_l}{h} \right)^3 \cdot \left(\frac{n(T) + 1}{n(T)} \right)^{\frac{1}{2}p} \cdot \exp \left[-S(2n(T) + 1) \right] \cdot I_p \left(2S \sqrt{n(T)(n(T) + 1)} \right) \quad (10)$$

With the thermal average of the single vibrational quantum number:

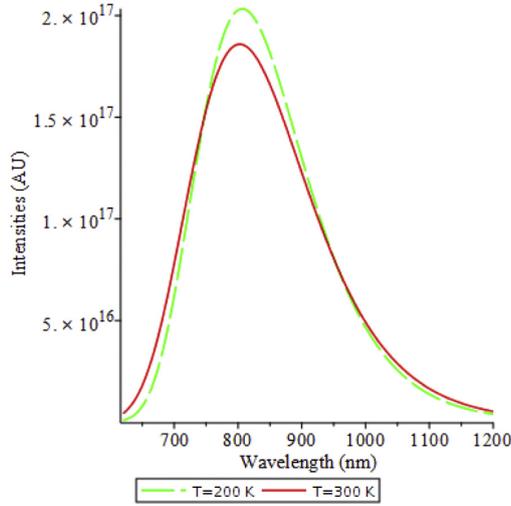


Fig. 2. Spectral shapes for fluorescence according to two temperatures in K (theoretical shapes given by Equation (13)); maxima at 800 nm.

$$n(T) = \left\{ \exp\left(\frac{\hbar\omega_l}{kT}\right) - 1 \right\}^{-1} \quad (11)$$

I_p notes the first Bessel function of order p . Numerical calculations showed that $W_p(200 \text{ K}) = 4.579 \cdot 10^{43} \text{ (Hz)}^3$. Between $W_p(200 \text{ K})$ and $W_p(0 \text{ K})$, variations are about 0.4%. The constant values of the radiative lifetime which occur below 200 K are reproduced. We get a formula for the radiative lifetime of e level:

$$\frac{1}{\tau} = n \cdot \frac{(2 + n^2)^2}{9} \cdot e^2 C^2 X \cdot \left[\frac{16\pi^3}{3\epsilon_0 c^3 \hbar} \right] \cdot W_p(E, S, \hbar\omega_l, T) \quad (12)$$

Thanks to Equation (12), we compute the X factor of Ti:sapphire: $X = 1.8110$.

3.3. Experimental tests: the calculation of the stimulated emission cross-sections

We assume $C = 4.755 \times 10^{-12} \text{ m}$. We can state that $2A^2 + B^2 = C^2(X-1) = 1.8337 \times 10^{-23} \text{ m}^2$.

The fluorescence intensities are proportional (with the same factor) to the frequency in the cube corrected by the Franck-Condon parameter [17]. We write them with the wavelength variable:

$$\begin{aligned} I_\pi(\lambda) &\propto \frac{1}{\lambda^3} \cdot \left(F\left(\frac{C}{\lambda}\right) \cdot \Delta\nu\right) \cdot 2C^2 \\ I_\sigma(\lambda) &\propto \frac{1}{\lambda^3} \cdot \left(F\left(\frac{C}{\lambda}\right) \cdot \Delta\nu\right) \cdot (2A^2 + B^2) \end{aligned} \quad (13)$$

The spectral shapes for these fluorescence intensities are shown in Fig. 2. We model maximum intensities at 800 nm.

Following J.M. Eggleston et al. [18], we formulate the stimulated emission cross-section parallel to the c axis:

$$\sigma_\pi(\lambda) = \frac{\eta\lambda^5 I_\pi(\lambda)}{8\pi c\tau} \left[\frac{n_\pi^2}{3} \int \lambda I_\pi(\lambda) d\lambda + \frac{2n_\sigma^2}{3} \int \lambda I_\sigma(\lambda) d\lambda \right]^{-1} \quad (14)$$

where $\eta = 0.82$ is the fluorescence efficiency, $\tau = 3.2 \mu\text{s}$ the radiative lifetime at 300 K, $n_\pi = 1.752$ and $n_\sigma = 1.760$ the refractive

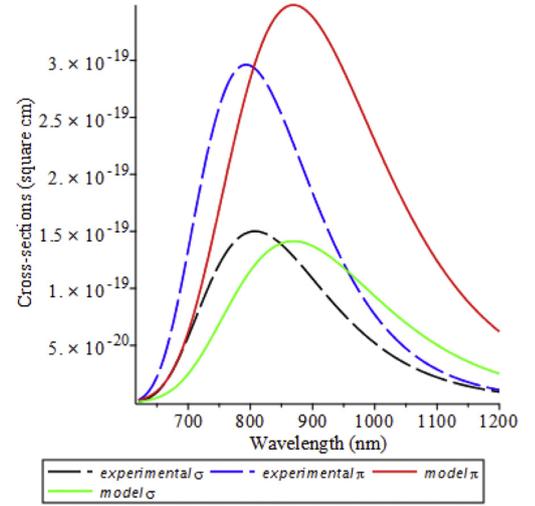


Fig. 3. Emission cross-sections at 300 K for both polarizations π and σ . Model (theoretical) solid lines are drawn from Equations (13) and (14). Experimental long-dashed lines were determined by the fitted Poisson distribution [19].

indices relative to the axis parallel and perpendicular to the c axis. I_π and I_σ are the spontaneous emission intensities according to the polarizations. Simulation results are shown in Fig. 3.

The experimental curves for Ti:sapphire stimulated emission cross-sections versus wavelength were determined by the fitted Poisson distribution [19]. We use such fitted curves as experimental references. At 300 K, our modeling gave maxima for the both emission cross-sections at 866 nm. We computed a slight shift for frequencies; we know that the experimental maxima are located at 800 nm. Such a discrepancy may be due to the power law $\sigma \propto \lambda^2 \cdot \left(F\left(\frac{C}{\lambda}\right) \cdot \Delta\nu\right)$. The computed emission cross-section maxima are $3.47 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ and $1.41 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$. The respective experimental maxima are $3.0 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$ and $1.5 \times 10^{-19} \text{ cm}^2$.

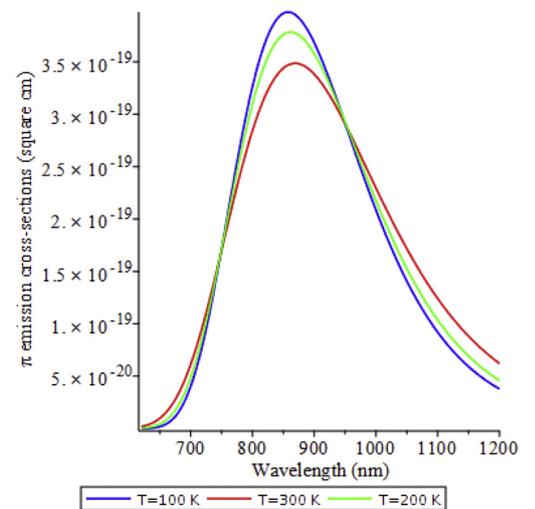


Fig. 4. π - emission cross-sections for three different temperatures T. Model (theoretical) lines are drawn from Equations (13) and (14).

We now give simulations for the emission cross-sections when temperature varies. We choose to use Equation (14) and we assume that the ratio $\frac{\eta}{\tau}$ is constant with temperature [2]. Such simulations can be achieved because we know the dipole strengths (assumed to be independent of temperature) and the modeling of the spectral shape for fluorescence over a temperature range. The refractive indexes are taken as constant. We gain Fig. 4. The emission cross-section maxima increase when temperature is lowered.

4. Conclusion

Our knowledge of spontaneous emission processes in sapphire doped with titanium has increased. We believe that our value for the moment constant C is the most accurate because it does not depend on the crude point charge model or another crystal field theory. C only relies on the correct experimental measurements of the oscillator strength. We computed very good orders of magnitude for the stimulated emission cross-sections. Computers which produce lasing simulations may be fed with such emission cross-section values.

Now we can explain the choice of our alternative procedure. The latter gives new insights on the photo-physical properties of Ti:sapphire by setting, for example, a true relationship between the oscillator strength and the radiative lifetime. Equation (12) may be a fair evidence for this statement. When we know the oscillator strength, modelings for the lineshape which would not rely on spontaneous emission time measurements and good crystal field descriptions, we could then compute the radiative lifetime below a reference temperature. This relationship may ease the very delicate measurements of radiative lifetimes. Our procedure may also check the consistency of spectroscopic theories and the equality of the dipole strength values for both absorption and emission processes.

A byproduct of the present approach (but this is a meaningful result) is the following equation:

$$\frac{1}{\tau} = n \cdot \left\{ \frac{E_l}{E} \right\}^2 \cdot e^2 C^2 X \cdot \left\{ \frac{16\pi^3}{3\epsilon_0 c^3 h} \right\} \cdot W_p(S, \omega_l, T \leq T_0) \quad (15)$$

It holds for the large material class of insulators hosting impurity atoms (we hope to apply the present approach to rare-earth ion in dielectric host lattice). $\left\{ \frac{E_l}{E} \right\}^2$ stands for the local field correction (E is the incident electric field and E_l notes the local field), S and ω_l are Huang-Rhys parameters. The temperature T must be below the value T_0 in order to neglect the non-radiative processes.

In future works, we will refine the modelings of the crystal field parameters and of the dipole moment constants. We could take

into account the overlaps between the impurity atom wave-functions and those associated with the ligand atoms. This should modify the X factor value. Here we stress again that the alternative and chosen procedure shown in 3.2.2. does not depend on the modeling of the crystal field parameters, but rather on lifetime and oscillator strength measurements.

We claim that our theoretical transition rate relationship indeed presents a very novelty based on: "la méthode de la résolvente". Moreover we do not use any crystal field formula and we do not care about the physical mechanism which produces the electric dipole moments if it well works in producing the latter.

We failed to model absorption spectra. We will aim at further studying the Jahn-Teller effect for Ti^{3+} in sapphire in order to understand the double-band structure for the absorption spectra. We claim that the absence of internal structure for the spontaneous emission bands has allowed us to conduct computations having assumed a Gaussian multiphonon transition lineshape.

Acknowledgments

This study was supported by the DGA (Délégation Générale pour l'Armement).

References

- [1] P.F. Moulton, *J. Opt. Soc. Am. B* 3 (1986) 1.
- [2] P. Albers, E. Stark, G. Huber, *J. Opt. Soc. Am. B* 3 (1986) 1.
- [3] P. Albers, Ph.D. dissertation, Universität Hamburg, FRG (1986).
- [4] D.S. McClure, *J. Chem. Phys.* 36 (1962) 10.
- [5] K. Huang, A. Rhys, *Proc. R. Soc. Lond. Ser. A* (1950, 204(1078), 406–423).
- [6] Max Born, K. Huang, *Dynamical Theory of Crystal Lattices*, 1988.
- [7] F.A. Reuse, *Electrodynamique et optique quantiques (Presses polytechniques et universitaires romandes)*, 2007.
- [8] I.B. Bersuker, *Electronic Structure and Properties of Transition Metal Compounds*, 1996.
- [9] I.B. Bersuker, V.Z. Polinger, in: Yu E. Perlin, M. Wagner (Eds.), *The Dynamical Jahn-teller in Localized Systems*, 1984. North-Holland, Amsterdam.
- [10] YuE. Perlin, B.S. Tsukerblat, *Optical bands and polarization dichroism of Jahn-Teller centers*, in: *The Dynamical Jahn-teller Effect in Localized Systems*, Elsevier Science Publishers B.V., 1984.
- [11] C.J. Ballhausen, *Introduction to Ligand Field Theory*, 1962.
- [12] F. Auzel, J.M. Breteau, *J. Phys. Colloq.* 48 (1987) C7.
- [13] J.S. Griffith, *The Theory of Transition-metal Ions*, 1980.
- [14] S.K. Mohapatra, F.A. Kröger, *J. Am. Ceram. Soc.* 60 (1977) 9–10.
- [15] M. Lax, *J. Chem. Phys.* 20 (1952) 11.
- [16] D.L. Dexter, *Phys. Rev.* 101 (1956) 1.
- [17] M. Brousseau, *Les défauts ponctuels dans les semiconducteurs (les éditions de physique)*.
- [18] J.M. Eggleston, L.G. DeShazer, K.W. Kangas, *IEEE J. Quantum Electron.* 24 (6) (1988).
- [19] D. Curie, *Absorption and emission spectra*, in: B. Di Bartolo (Ed.), *Optical Properties of Ions in Solids*, Plenum, New York, 1975, p. 89.

Bibliographie

- [1] Craig D.P, Thirunamachandran T. «Molecular Quantum Electrodynamics ». London : Academic Press Inc Ltd., 1984. P. 15.
- [2] Craig D.P, Thirunamachandran T. «Molecular Quantum Electrodynamics ». London : Academic Press Inc Ltd., 1984. P. 22.
- [3] Reuse FA. «Électrodynamique et optique quantiques ». Lausanne : Presses polytechniques et universitaires romandes, 2007. P. 245.
- [4] Craig D.P, Thirunamachandran T. «Molecular Quantum Electrodynamics ». London : Academic Press Inc Ltd., 1984. P. 30.
- [5] Craig D.P, Thirunamachandran T. «Molecular Quantum Electrodynamics ». London : Academic Press Inc Ltd., 1984. P. 31-36.
- [6] Reuse FA.«Électrodynamique et optique quantiques ». Lausanne : Presses polytechniques et universitaires romandes, 2007. P. 253-254.
- [7] Cohen-Tannoudji C., Diu B., Laloë F.«Mécanique quantique ».-Tome I- Paris : Hermann, 1992. P. 486-501.
- [8] Craig D.P, Thirunamachandran T. «Molecular Quantum Electrodynamics ». London : Academic Press Inc Ltd., 1984. P. 59.
- [9] Reuse FA.«Électrodynamique et optique quantiques ». Lausanne : Presses polytechniques et universitaires romandes. 2007, P. 441-443.
- [10] Scully M.O., Zubairy M.S. «Quantum Optics ». Cambridge : Cambridge University Press,1999. P. 162.
- [11] Reuse FA.«Électrodynamique et optique quantiques ». Lausanne : Presses polytechniques et universitaires romandes, 2007. P. 404-413.
- [12] Sugano S., Tanabe Y., Kamimura H. «Multiplets of Transition-Metal Ions in Crystals ». New York : Academic Press Inc., 1970. P. 77-78.
- [13] Griffith J.S.«The Theory of Transition-Metal Ions ». Cambridge : Cambridge University Press, 1964. P. 68-69.

- [14] Sugano S., Tanabe Y., Kamimura H. «Multiplets of Transition-Metal Ions in Crystals ». New York : Academic Press Inc., 1970. P. 113-116.
- [15] Reuse F.A. «Électrodynamique et optique quantiques ». Lausanne : Presses polytechniques et universitaires romandes, 2007. P. 457-463.
- [16] McClure D.S. «Optical Spectra of Transition-Metal Ions in Corundum ». in *The Journal of Chemical Physics*. 1962- Vol 36 N° 10. P. 2757-2779.
- [17] Lacovara P., Esterowitz L., Kokta M. «Growth, Spectroscopy, and Lasing of Titanium-Doped Sapphire ». in *IEEE Journal of Quantum Electronics*. 1985- Vol. QE-21. P. 1614-1618.
- [18] Albers P., Stark E., Huber G. «Continuous-wave laser operation and quantum efficiency of titanium-doped sapphire ». in *J. Opt. Soc. Am. B*. 1986-Vol. 3 N° 1. P. 134-139.
- [19] Sugano S., Tanabe Y., Kamimura H. «Multiplets of Transition-Metal Ions in Crystals ». New York : Academic Press Inc., 1970. P. 230-235.
- [20] Bersuker I.B. «Electronic structure and properties of transition metal compounds ». New York : John Wiley and sons, 1996. 667 p.
- [21] Bersuker I.B., Polinger V.Z. «Theoretical Background of the Jahn-Teller Effect ». in *The Dynamical Jahn-Teller Effect in Localized Systems*. Amsterdam : North-Holland. 1984. P. 21-85.
- [22] Perlin Yu.E., Tsukerblat B.S. «Optical Bands and Polarization Dichroism of Jahn-Teller Centers ». in *The Dynamical Jahn-Teller Effect in Localized Systems*. Amsterdam : North-Holland. 1984. P. 251-346.
- [23] Huang K., Rhys A. «Theory of light absorption and non-radiative transitions in F-centres ». in *Proceeding of the Royal Society of London Series A*. 1950- Vol. 204 Issue 1078. P. 406-423.
- [24] Born M., Huang K. «Dynamical theory of crystal lattices ». Oxford : Clarendon press, 1968. 420 p.
- [25] Ballhausen C.J. «Introduction to ligand field theory ». New York : McGraw-Hill, 1962. 298 p.
- [26] Griffith J.S. «The Theory of Transition-Metal Ions ». Cambridge : Cambridge University Press, 1964. P. 57.

- [27] Pryce M.H.L. «Interaction of lattice vibrations with electrons at point defects », in *Phonons in perfect lattices and in lattices with point imperfections*. Edinburgh : Scottish Universities Summer School. 1966.
- [28] Lax M. «The Franck-Condon Principle and Its Application to Crystals », in *The Journal of Chemical Physics*. 1952-Vol. 20 N°11. P. 1752-1760.
- [29] Dexter D.L. «Absorption of Light by Atoms in Solids », in *Physical Review*. 1956-Vol. 101 N°1. P. 48-55.
- [30] Mohapatra S.K., Kröger F.A. «Defect Structure of $\alpha - Al_2O_3$ Doped with Titanium », in *Journal of the American Ceramic Society*. 1977-Vol. 60 N°9-10. P. 381-387.
- [31] Reuse F.A.«Électrodynamique et optique quantiques ». Lausanne : Presses polytechniques et universitaires romandes. 2007. P.462.
- [32] Brousseau M. «Les défauts ponctuels dans les semi-conducteurs ». Les Ulis : Les éditions de physique, 1989. P. 148.
- [33] Brousseau M. «Les défauts ponctuels dans les semi-conducteurs ». Les Ulis : les éditions de physique. 1989. P. 149.
- [34] Brousseau M. «Les défauts ponctuels dans les semi-conducteurs ». Les Ulis : les éditions de physique. 1989. P. 149-150.
- [35] Reuse F.A.«Électrodynamique et optique quantiques ». Lausanne : Presses polytechniques et universitaires romandes. 2007. P. 458.
- [36] Sanchez A., Fahey R.E., Strauss A.J., Aggarwal R.L. «Room-temperature continuous-wave operation of a $Ti : Al_2O_3$ laser». in *Optics Letters*. 1986-Vol.11 issue 6. P. 363-364.
- [37] Eggleston J.M., DeShazer L.G., Kangas K.W. «Characteristics and kinetics of laser-pumped $Ti :sapphire$ oscillators », in *IEEE Journal of Quantum Electronics*. 1988-Vol. 24 N°6. P. 1009-1015.
- [38] Boyd R.W. «Nonlinear Optics ». Boston : Academic Press Inc., 1992. P. 121-122.
- [39] Scully M.O., Zubairy M.S. «Quantum Optics ». Cambridge : Cambridge University Press,1999. P. 233.
- [40] Malitson I.H. «Refraction and Dispersion of Synthetic Sapphire », in *Journal of the Optical Society of America*. 1962-Vol. 52 N°12. P. 1377-1379.
- [41] Reuse F.A.«Électrodynamique et optique quantiques ». Lausanne : Presses polytechniques et universitaires romandes. 2007. P. 685-701.

- [42] Gié H., Sarmant J.P. «Électromagnétisme volume 1 ». Paris : Lavoisier, 1985. P. 171.
- [43] Haken H.«Light. Volume 2. Laser light dynamics ». Amsterdam : North-Holland physics, 1985. 336 p.
- [44] Haken H.«Light. Volume 2. Laser light dynamics ». Amsterdam : North-Holland physics, 1985. P. 103.
- [45] Haken H.«Light. Volume 2. Laser light dynamics ». Amsterdam : North-Holland physics, 1985. P. 104.
- [46] Scully M.O., Zubairy M.S. «Quantum Optics ». Cambridge : Cambridge University Press, 1999. P. 164-173.
- [47] Haken H. «Laser theory ». Berlin : Springer-Verlag, 1984. 320 p.
- [48] Haken H.«Light. Volume 2. Laser light dynamics ». Amsterdam : North-Holland physics, 1985. P. xxx. ?
- [49] Cagnac B., Faroux J-P. «Lasers : interaction lumière-atomes». Les Ulis : EDP sciences, 2002. P. 357.
- [50] Cagnac B., Faroux J-P. «Lasers : interaction lumière-atomes». Les Ulis : EDP sciences, 2002. P. 197-198.
- [51] Scully M.O., Zubairy M.S. «Quantum Optics ». Cambridge : Cambridge University Press,1999. P.233-236.
- [52] Bohr N. «Physique atomique et connaissance humaine ». Paris : Gallimard, 1991. P. 29.
- [53] Bohr N. Lettre de Bohr à C.G. Darwin de juillet 1919, in *Bohr Collected Works*. Amsterdam/New york : American Elsevier Publishing Company. 1972. Vol. 5. P. 15-16.
- [54] Reuse F.A.«Électrodynamique et optique quantiques ». Lausanne : Presses polytechniques et universitaires romandes. 2007. P. 423.
- [55] Scully M.O., Zubairy M.S. «Quantum Optics ». Cambridge : Cambridge University Press.1999. P. 220-244.
- [56] Khanin Y.I., Kocharovskaya O.A. «Inversionless amplification of ultrashort pulses and coherent population trapping in a three-level medium ». in *J. Opt. Soc. Am. B*. 1990-Vol. 7 N°10. P. 2016-2024.
- [57] Scully M.O., Zhu S.Y. «Degenerate Quantum-Beat Laser : Lasing without Inversion and Inversion without Lasing ». in *Physical Review Letters*. 1989-Vol. 62 N°24. P. 2813-2816.

- [58] Kocharovskaya O., Mandel P. «Amplification without inversion : The double- Λ scheme ». in *Physical Review A*. 1990-Vol. 42 N°1. P. 523-535.
- [59] Fill E.E., Scully M.O., Zhu S.Y. «Lasing without inversion via the lambda quantum-beat laser in the collision-dominated regime ». in *Optics Communications*. 1990-Vol. 77 N°1. P. 36-40.

Bibliographie thématique et chronologique

Monographies

Monographies générales

1. Ziman J.M. « Electrons and phonons: the theory of transport phenomena in solids ». Oxford: Clarendon Press, 1960. 550 p.
2. Born M., Huang K. « Dynamical theory of crystal lattices ». Oxford: Clarendon press, 1968. 420 p.
3. Craig D.P., Thirunamachandran T. « Molecular Quantum Electrodynamics ». London: Academic Press Inc Ltd., 1984. 324 p.
4. Gié H., Sarmant J.P. « Électromagnétisme volume 1 » . Paris: Lavoisier, 1985. 207 p.
5. Brousseau M. « Les défauts ponctuels dans les semi-conducteurs ». Les Ulis: les éditions de physique, 1989. 384 p.
6. Bohr N. « Physique atomique et connaissance humaine ». Paris: Gallimard, 1991. 641 p.
7. Cohen-Tannoudji C., Diu B., Laloë F. « Mécanique quantique - Tome I ». Paris: Hermann, 1992. 890 p.
8. Boyd R.W. « Nonlinear Optics ». Boston: Academic Press Inc., 1992. 439 p.
9. Messiah A. « Mécanique quantique ». Paris: Dunod, 1995. 974 p.
10. Scully M.O., Zubairy M.S. « Quantum Optics ». Cambridge: Cambridge University Press, 1999. 630 p.
11. Loudon R. « The quantum theory of light ». Oxford: Oxford University press, 2000. 464 p.
12. Reuse F.A. « Électrodynamique et optique quantiques ». Lausanne: Presses polytechniques et universitaires romandes, 2007. 1276 p.

Ion-métal transition et champ cristallin

13. Ballhausen C.J. « Introduction to ligand field theory ». New York: McGraw-Hill, 1962. 298 p.
14. Griffith J.S. « The Theory of Transition-Metal Ions ». Cambridge: Cambridge University Press, 1964. 455p.
15. Sugano S., Tanabe Y., Kamimura H. « Multiplets of Transition-Metal Ions in Crystals ». New York: Academic Press Inc., 1970. 331 p.
16. Morrison C.A. « Crystal Fields for Transition-Metal Ions in Laser Host Materials ». Berlin et Heidelberg: Springer-Verlag, 1992. 190 p.
17. Bersuker I.B. « Electronic structure and properties of transition metal compounds ». New York: John Wiley and sons, 1996. 668 p.
18. « Optical Properties of 3d-Ions in Crystals: Spectroscopy and Crystal Field Analysis ». Editors: Nicolae M. Avram and Mikhail G. Brik, 2013. 278 p.

Intégrales de chemin

19. Schulman L. « Techniques and applications of path integration ». New York : J. Willey and Sons, 1981. 359 p.
20. Brown L.S. « Quantum Field Theory ». Cambridge: Cambridge University Press, 1995. 542 p.
21. Feynman R.P., Hibbs A.R. « Quantum Mechanics and Path Integrals ». Mineola and N.Y. : Dover Publications, 2010. 371 p.

Théories du laser

22. Haken H. « Laser theory ». Berlin: Springer-Verlag, 1984. 320 p.
23. Haken H. « Light. Volume 2. Laser light dynamics ». Amsterdam: North-Holland physics, 1985. 336 p.
24. Cagnac B., Faroux J-P. « Lasers : interaction lumière-atomes ». Les Ulis: EDP sciences, 2002. 526 p.

Articles dans des périodiques scientifiques

Généraux

25. Huang K., Rhys A. « Theory of light absorption and non-radiative transitions in F-centres ». in *Proceeding of the Royal Society of London Series A*. 1950- Vol. 204 Issue 1078. P. 406-423.
26. Lax M. « The Franck-Condon Principle and Its Application to Crystals ». in *The Journal of Chemical Physics*. 1952-Vol. 20 N°11. P. 1752-1760.
27. Dexter D.L. « Absorption of Light by Atoms in Solids ». in *Physical Review*. 1956-Vol. 101 N°1. P. 48-55.
28. McCumber D.E. « Einstein Relations Connecting Broadband Emission and Absorption Spectra ». in *Physical Review*. 1964-Vol 136 N°4A. P. 954-957.
29. McCumber D.E. « Theory of Phonon-Terminated Optical Masers». In *Physical Review*. 1964-Vol. 134 N°2A. P. 299-306.
30. Struck C.W., Fonger W.H. «Transition rates in single- $\hbar\omega$ models ». in *Journal of Luminescence*. 1979-Vol. 18-19 Part 1. P. 101-104.
31. Auzel F., Breteau J.M. «Materials for IR tunable laser applications and non radiative decay processes ». in *J. Phys. Colloques*. 1987-Vol. 48 N°C7. P. 451-454.

Ti:saphir

32. McClure D.S. « Optical Spectra of Transition-Metal Ions in Corundum ». in *The Journal of Chemical Physics*. 1962- Vol. 36 N° 10. P. 2757-2779.
33. Malitson I.H. « Refraction and Dispersion of Synthetic Sapphire ». in *Journal of the Optical Society of America*. 1962-Vol. 52 N°12. P. 1377-1379.
34. Macfarlane R.M., Wong J.Y., Sturge M.D. « Dynamic Jahn-Teller Effect in Octahedrally Coordinated d^1 Impurity Systems ». in *Physical Review*. 1968-Vol. 166 N°2. P. 250-258.
35. Clementi E., Roetti R. « Atomic Data and Nuclear Data Tables 14 ». IBM Research Laboratory, San Jose, California 95193. 1974. P. 403.
36. Mohapatra S.K., Kröger F.A. « Defect Structure of α - Al_2O_3 Doped with Titanium ». in *Journal of the American Ceramic Society*. 1977-Vol. 60 N°9-10. P. 381-387.
37. Lacovara P., Esterowitz L., Kokta M. « Growth, Spectroscopy, and Lasing of Titanium-Doped Sapphire ». in *IEEE Journal of Quantum Electronics*. 1985- Vol. QE-21. P. 1614-1618.
38. Albers P., Stark E., Huber G. « Continuous-wave laser operation and quantum efficiency of titanium-doped sapphire ». in *J. Opt. Soc. Am. B*. 1986-Vol. 3 N° 1. P. 134-139.
39. Sanchez A., Fahey R.E., Strauss A.J., Aggarwal R.L. « Room-temperature continuous-wave operation of a Ti: Al_2O_3 laser ». in *Optics Letters*. 1986-Vol. 11, issue 6, P. 363-364.
40. Moulton P.F. « Spectroscopic and laser characteristics of Ti: Al_2O_3 ». in *J. Opt. Soc. Am. B*. 1986-Vol. 3 N°1. P. 125-133.
41. Eggleston J.M., DeShazer L.G., Kangas K.W. « Characteristics and kinetics of laser-pumped Ti:sapphire oscillators ». in *IEEE Journal of Quantum Electronics*. 1988-Vol. 24 N°6. P. 1009-1015.
42. Rapoport W.R., Khattak C.P. « Titanium sapphire laser characteristics ». in *Applied Optics*. 1988- Vol. 27 N°13. P. 2677-2684.
43. Sugimoto A. et al. « Spectroscopic properties of Ti^{3+} -doped BeAl_2O_4 ». in *J.Opt.Soc.Am.B*. 1989-Vol. 6 N°12. P. 2334-2337.
44. Eilers H., Strauss E., Yen W.M. « Photoelastic effect in Ti^{3+} -doped sapphire ». in *Physical Review B*. 1992- Vol. 45 N°17. P. 9604-9610.

45. Dong J., Deng P. « Ti:sapphire crystal used in ultrafast lasers and amplifiers ». in *Journal of Crystal Growth*. 2004- 261 P. 514-519.
46. Alombert-Goget G. et al. « Large Ti-doped sapphire bulk crystal for high power laser applications ». in *Optical Materials*. 2014- Vol. 36 Issue 12. P. 2004-2006.
47. Alombert-Goget G. et al. « Luminescence and coloration of undoped and Ti-doped sapphire crystals grown by Czochralski technique ». in *Optical Materials*. 2016- Vol. 169 Part B. P. 516-519.

Lasing Without population Inversion

48. Scully M.O., Zhu S.Y. « Degenerate Quantum-Beat Laser: Lasing without Inversion and Inversion without Lasing ». in *Physical Review Letters*. 1989-Vol. 62 N°24. P. 2813-2816.
49. Khanin Y.I., Kocharovskaya O.A. « Inversionless amplification of ultrashort pulses and coherent population trapping in a three-level medium ». in *J. Opt. Soc. Am. B*. 1990-Vol. 7 N°10. P. 2016-2024.
50. Kocharovskaya O., Mandel P. « Amplification without inversion: The double- Λ scheme ». in *Physical Review A*. 1990-Vol. 42 N°1. P. 523-535.
51. Fill E.E., Scully M.O., Zhu S.Y. « Lasing without inversion via the lambda quantum-beat laser in the collision-dominated regime ». in *Optics Communications*. 1990-Vol. 77 N°1. P. 36-40.
52. Bergou J.A., Bogar P. « Quantum theory of a noninversion laser with injected atomic coherence ». in *Physical Review A*. 1991-Vol. 43 N°9. P.4889-4900.
53. Svidzinsky A.A., Yuan L., Scully M.O. « Transient lasing without inversion ». in *New Journal of Physics*. 2013- Vol. 15 N°053044. 9p.

Superradiance

54. Ernst V. « Coherent Emission of a Photon by Many Atoms ». in *Z. Physik*. 1969- 218. P. 111-128.
55. Svidzinsky A.A. « Nonlocal effects in single-photon superradiance ». in *Physical Review A*. 2012- Vol. 85 N°013821. P. 1-5.
56. Liu Yi et al. « Recollision-Induced Superradiance of Ionized Nitrogen Molecules ». in *Physical Review Letters*. 2015. 133203 P. 1-5.

Actes de colloques

57. Pryce M.H.L. « Interaction of lattice vibrations with electrons at point defects ». in *Phonons in perfect lattices and in lattices with point imperfections*. Edinburgh: Scottish Universities Summer School. 1966.
58. Bersuker I.B., Polinger V.Z. « Theoretical Background of the Jahn-Teller Effect ». in *The Dynamical Jahn-Teller Effect in Localized Systems*. Amsterdam: North-Holland. 1984. P. 21-85.
59. Perlin Yu.E., Tsukerblat B.S. « Optical Bands and Polarization Dichroism of Jahn-Teller Centers ». in *The Dynamical Jahn-Teller Effect in Localized Systems*. Amsterdam: North-Holland. 1984. P. 251-346.
60. Morrison C.A. « Angular momentum theory applied to interactions in solids ». in *Lecture notes in chemistry* 47. 1988. P. 119.
61. Cartier P. « L'intégrale de chemins de Feynman:d'une vue intuitive à un cadre rigoureux ». in *Leçons de mathématiques d'aujourd'hui volume 1*. Cassini. 2003. P. 27-59.

Thèses

62. P. Albers, Ph.D. dissertation , Universität Hamburg, FRG, 1986
63. E. Gaudry, Ph.D. dissertation « Structure locale autour des impuretés dans les gemmes, étudiée par spectroscopies et calculs ab initio ». Directeurs de these: Christian Brouder et Philippe Saintavit. 224 p.

Titre : Détermination théorique des propriétés optiques du saphir dopé au titane à partir de sa microscopie et analyse de ses capacités de laser sans inversion de populations.

Mots clés : Ti:saphir; physique quantique; effets laser; effet laser sans inversion de populations.

Résumé : Cet exposé est scindé en deux grandes parties. Dans la première, nous estimons des constantes photo-physiques du saphir dopé au titane à partir d'un modèle analytique simple exploitant une théorie de Huang-Rhys pour la détermination du profil spectral des bandes simples et une hypothèse réaliste de superposition de ces dernières. Nous déterminons une formule pour l'indice de réfraction total du Ti:saphir en fonction de la concentration de dopant. Dans une seconde partie, nous évaluons, selon la vérification d'un concept, la capacité de laser sans inversion de populations pour un cristal dopé possédant une basse symétrie. Nous appuyons notre démonstration en établissant une condition de seuil généralisée d'effet laser. Ce concept pourrait être une rupture technologique dans le domaine des grands cristaux dopés et n'a pas encore été investigué par la communauté.

Title: Theoretical determination of the optical properties of titanium doped sapphire from its microscopy and analysis of its laser capabilities without population inversion.

Keywords: Ti: sapphire; quantum physics; Laser effects; Laser effect without population inversion.

Abstract : This presentation is split into two main parts. In the first, we estimate photo-physical constants of titanium doped sapphire from a simple analytical model using a Huang-Rhys theory for the determination of the spectral profile of simple bands and a realistic hypothesis of superposition of the latter. We define a formula for the total refractive index of Ti: sapphire as a function of dopant concentration. In a second part, we evaluate, according to the verification of a concept, the laser capability without population inversion for a doped crystal with low symmetry. We support our demonstration by establishing a generalized laser threshold condition. This concept would be a technological breakthrough in the field of large doped crystals and has not yet been investigated by the community.

